Tome 20 N° 5 Mai 1959

LE JOURNAL DE PHYSIQUE
ET
LE RADIUM

ÉTUDE DE LA DÉSINTÉGRATION DE L'ERBIUM 169

Par G. CHARPAK et F. SUZOR,
Laboratoire de Synthèse Atomique, C. N. R. S.

Résumé. — Utilisant deux compteurs proportionnels en coïncidence et des sources vaporisées sous vide de moins de 0,5 microgramme par cm² de matière, on a étudié le spectre des photons et celui des électrons de conversion du niveau excité de 8,4 keV du thulium 169, atteint par désintégration de l'erbium 169. On a obtenu pour la probabilité de désintégration vers le niveau excité la valeur (42 ± 1) %, et pour le coefficient de conversion interne des photons de 8,4 keV la valeur $\alpha_M + \alpha_N = 106 \pm 6$.

Abstract. — By the use of two proportional counters in coincidence, with sources of less than 0,5 micrograms per cm², vacuum evaporated, a study has been made of the low energy electron and photon spectrum of erbium 169. The branching ratio to the 8,4 keV excited level of thulium 169 is found to be (42 ± 1) %. The internal coefficient is found to be $\alpha_M + \alpha_N = 106 \pm 6$.

I. **Introduction.** — Se désintégrant par radioactivité β^- avec une période de 9 jours, l'erbium 169 aboutit soit au niveau fondamental du thulium 169, soit au niveau excité de 8,4 keV de cet élément. Hatch et Boehm [1] utilisant un spectromètre semi-circulaire dont la transmission s'étend jusqu'à 2 keV, ont obtenu les électrons de conversion du niveau de 8,4 keV et en ont déduit, pour l'embranchement aboutissant à ce niveau excité, une probabilité de 15 %.

Ce niveau excité du thulium 169 est également atteint par désintégration de l'ytterbium 169 et a été ainsi étudié par différents auteurs [2], [3], [4] qui en ont déduit, pour l'énergie d'excitation, la valeur (8,42 $\pm$ 0,05) keV et ont conclu que c'était un niveau rotationel de parité +, de spin 3/2, correspondant au nombre quantique $K = 1/2$ (transition M1 vers l'état fondamental). Beekhuis et de Waard [5] ont mesuré la période de ce niveau excité et ont trouvé la valeur (37 $\pm$ 5) 10^{-10} sec.

Les photons de 8,4 keV suivant la désintégration de ce niveau excité du thulium 169 n'avaient été jusqu'à présent jamais observés, et Bisi, Terrani et Zappa [6] en étudiant la désintégration de l'erbium 169 ont donné pour limite supérieure de la probabilité d'émission de ces photons la valeur 2.10^{-2} ayant été gênés par une impureté de thulium 170.

II. **Instrument et sources.** — Nous avons utilisé un spectromètre [7] à compteurs proportionnels en coïncidence pour l'étude de l'erbium 169 qui nous a permis d'obtenir séparément le spectre des photons de 8,4 keV et des électrons de conversion. Tenant compte de la présence dans la source d'une faible impureté du thulium 170, peu gênante, nous avons pu mesurer le rapport d'embranchement vers le niveau excité, pour lequel nous avons trouvé la valeur de 42 % et les coefficients de conversion interne, dans les couches M et N, $\alpha_M = 69$ et $\alpha_N = 37$.

Le fait que chacun des deux compteurs soit vu de la source sous un angle solide voisin de 2π, permet d'utiliser des sources de très faible intensité. Le spectre des électrons de conversion a été obtenu avec des sources dont l'intensité variait de 1 à 2.10^{-9} curie et le spectre des photons avec des sources d'intensité 10 fois plus grandes. Ces sources ont été obtenues par vaporisation sous vide et contenaient moins de 0,5 microgramme de matière par centimètre carré pour une intensité de 10^{-9} curie. Dans ces conditions, nous avons obtenu pour les électrons de conversion des raies symétriques de largeur et d'énergie convenables, prouvant que l'auto-absorption dans la matière de la source était pratiquement sans effet. Il n'en était pas de même avec des sources contenant 20 à 30 fois plus de matière ; celles-ci donnaient pour des électrons de conversion des raies élargies à une énergie 25 % plus basse que l'énergie attendue et d'intensité moitié environ de celle obtenue avec les sources présentant le moins de matière.

III. **Spectre des photons.** — Afin d'obtenir une bonne efficacité, les compteurs étaient remplis par un mélange d'argon sous une pression de 60 cm de mercure et de propane sous 6 cm de mercure. Les photons étaient enregistrés dans le compteur 1 sous un angle solide de 2π, après traversée d'un écran de 40 mg/cm² de beryllium dont le rôle était d'arrêter complètement le rayonnement β en donnant le moins possible de rayonnement de freinage externe ; le rayonnement β était enregistré sous un angle solide 2π dans le compteur 2, seules étant comptées les impulsions supérieures à 10 keV.

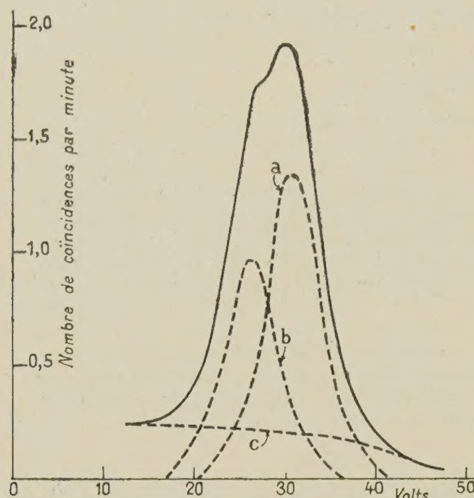


Fig. 1.
a : Photons de 8,4 keV de ^{169}Tm.
b : Raie (L — M) de ^{170}Yb.
c : Rayonnement de freinage.

La figure 1 donne, après soustraction du mouvement propre, le spectre des impulsions en coïncidences ainsi obtenues, pour 10 200 impulsions enregistrées par minute dans le compteur 2.

Le spectre se décompose en un fond continu facilement interpolable à l'emplacement des raies, et dû au rayonnement de freinage, et en deux raies distinctes. Ces deux raies correspondent respectivement, pour celle située à gauche, à la raie (L — M) de 7,4 keV de l'ytterbium provenant de l'impureté du thulium 170 et, pour celle de droite, à la raie de 8,4 keV de l'erbium 169. La décomposition de ce spectre en 2 raies est confirmée par la décroissance obtenue au bout de plusieurs semaines, l'erbium 169 ayant une période de 9 jours et le thulium 170 une période de 129 jours. Pour montrer que les 2 raies ainsi obtenues ont une forme en accord avec la résolution de l'appareil, nous donnons sur la figure n° 2 la raie (K — L) du cuivre d'énergie 8,05 keV, avec le même remplissage du compteur, obtenu lors de la désintégration par capture K du zinc 65.

En tenant compte de l'efficacité du compteur, de la géométrie et de l'absorption d'ailleurs faible à travers l'écran de beryllium, on trouve pour la raie de 8,4 keV, une intensité de $(3,9 \pm 0,2)\ 10^{-3}$. (La décroissance dans le temps de la source a montré que sur les 10 200 impulsions enregistrées dans le compteur 2, 8 140 étaient imputables à l'erbium 169 et 2 060 au thulium 170.)

La résolution du compteur proportionnel ne permet pas de donner pour l'énergie des photons une

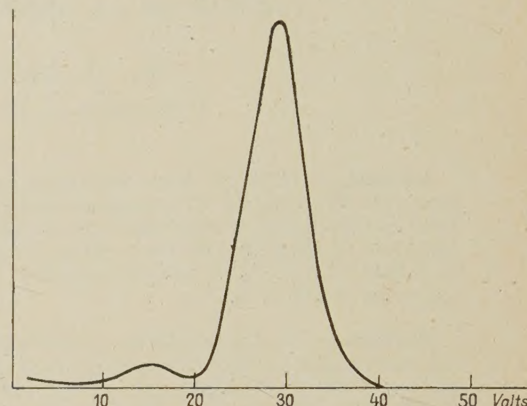


Fig. 2. — Raie (K — L) du ^{65}Cu.

valeur aussi précise que celle de $(8,42 \pm 0,05)$ keV attribuée au niveau par d'autres auteurs [2]. Toutefois, une étude de l'absorption dans un écran de nickel dont la discontinuité K est de 8,34 keV et dans un écran de cuivre dont la discontinuité K est de 8,98 keV, permet d'affirmer que la raie a une énergie située entre ces deux valeurs, ce qui est en bon accord avec la valeur 8,42 keV.

IV. **Spectre des électrons de conversion.** — Dans ce cas, les compteurs étaient remplis de propane sous une pression de 8 cm de mercure ; les électrons de conversion étaient enregistrés dans le compteur 1 dont le gaz était directement au contact de la source ; le rayonnement β était enregistré dans le compteur 2, seules étant comptées les impulsions supérieures à 10 keV. La source était disposée sur une feuille de formvar aluminisé de 40 microgrammes/cm², tendue sur un diaphragme circulaire de diamètre 5 millimètres situé sur la paroi verticale commune des deux compteurs cylindriques à axes horizontaux. Ces conditions expérimentales rendent négligeables les coïncidences parasites dues aux électrons projetés où à la rétrodiffusion du rayonnement β [7], [8].

La figure n° 3 reproduit dans ces conditions le spectre des électrons émis dans un angle solide 4π pour 1 000 rayons β. Ce spectre se décompose en 4 courbes : a représente les électrons convertis dans les couches M ayant des énergies de 6,1 ; 6,3 ;

6,5 keV ; *b* représente les électrons convertis dans les couches *N* d'énergie 7,9 keV ; *c* représente un fond d'électrons rétrodiffusés sur la membrane porte-source et arbitrairement choisi pour donner à la raie une forme symétrique ; *d* enfin représente un faible fond continu d'électrons associés au rayonnement β (ces électrons qui pourraient être

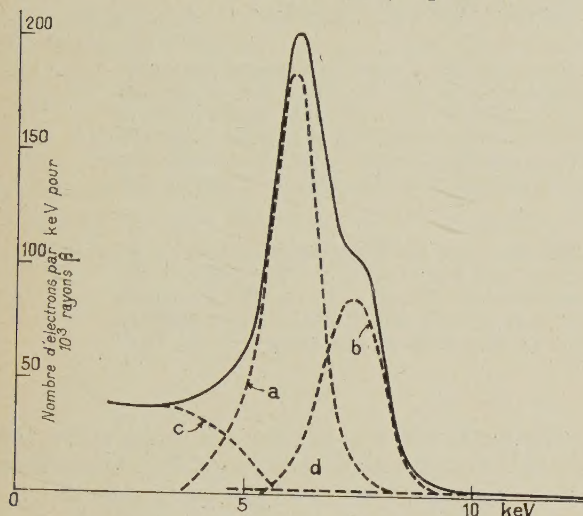


FIG. 3.

a : Raies de conversion dans les couches *M*.
b : Raies de conversion dans les couches *N*.
c : Électrons rétrodiffusés par la membrane porte-source
d : Fond continu d'électrons associés au rayonnement β.

dus au phénomène d'autoionisation consécutif à la désintégration β sont en désaccord avec les prévisions de la théorie sur ce phénomène et ont fait l'objet d'une étude spéciale pour d'autres radio-éléments [8]).

Ce spectre fournit pour les électrons convertis dans les couches *M* une intensité de 271.10^{-3} et pour ceux convertis dans les couches *N* une intensité de 145.10^{-3} (la décroissance en fonction du temps a permis comme pour les photons de tenir compte de l'impureté du thulium 170, responsable ici de 10 % du rayonnement enregistré dans le compteur 2, mais dont la contribution au spectre des électrons obtenus en coïncidence est inférieure à 1 %.

V. **Discussion des résultats.** — De l'intensité trouvée pour les photons de 8,4 keV et pour les électrons de conversion on déduit pour la probabilité *P* de désintégration de l'erbium 169 vers le niveau excité la valeur :

$$P = (42,0 \pm 1)\ \%.$$

L'erreur ainsi indiquée correspond à la précision statistique des mesures. On en déduit aussi le coefficient de conversion interne dans les couches *M* et *N* :

$$\alpha_M + \alpha_N = 106 \pm 6$$

et avec une précision moindre à cause du caractère un peu arbitraire de la séparation en deux raies du spectre, les coefficients de conversion interne dans les couches *M* et *N* séparément :

$$\alpha_M = 69 \pm 7 \qquad \alpha_N = 37 \pm 7.$$

Dans le cas d'une transition magnétique dipolaire d'un niveau rotationnel caractérisé par le nombre quantique $K = 1/2$, Mottelson et Nilsson [9] ont calculé pour la vie moyenne de cette transition la valeur $\tau_\gamma = 52.10^{-8}$ sec. Cette vie moyenne est liée à la période *T* du niveau rotationnel par la relation :

$$\tau_\gamma = (1 + \alpha_M + \alpha_N)\frac{T}{0,693}.$$

En prenant pour *T* la valeur $(37 \pm 5)\ 10^{-10}$ seconde mesurée par Beekhuis et de Waard [5] et pour $\alpha_M + \alpha_N$ la valeur que nous avons obtenue, on trouve :

$$\tau_\gamma = (57 \pm 8)\ 10^{-8} \text{ secondes},$$

en bon accord avec la valeur calculée par Mottelson et Nilsson.

Nous remercions M. J. Merinis pour la préparation des sources radioactives. Nous avons pu effectuer ce travail grâce aux moyens mis à notre disposition par le Centre National de la Recherche Scientifique et à une subvention allouée par le Commissariat à l'Énergie Atomique.

Manuscrit reçu le 19 décembre 1958.

BIBLIOGRAPHIE

[1] HATCH (E. N.) et BOEHM (F.), *Bull. Amer. Phys. Soc.*, 1956, II, 1, 390.
[2] HATCH (E. N.), BOEHM (F.), MARMIER (P.) et DUMOND (J. W. M.), *Phys. Rev.*, 1956, **104**, 745.
[3] MIHELICH (J. M.), WARD (T. J.) et JACOB (K. P.), *Phys. Rev.*, 1956, **103**, 1285.
[4] CORK (J. M.), BRICE (M. K.), MARTIN (D. W.), SCHMID (L. C.) et HELMER (R. G.), *Phys. Rev.*, 1956, **101**, 1042.
[5] BEEKHUIS (H.) et DE WAARD (H.), *Physica*, 1958, **XXIV**, 767.
[6] BISI (A.), TERRANI (S.) et ZAPPA (L.), *Nuovo Cimento*, 1956, IV, 758.
[7] CHARPAK (G.) et SUZOR (F.), *J. Physique Rad.*, décembre 1958, **19**, 167 A.
[8] SUZOR (F.) et CHARPAK (G.), *J. Physique Rad.*, janvier 1959, **20**, 25.
[9] MOTTELSON (B. R.) et NILSSON (S. G.), *Phys.*, 1955, **141**, 217.

DOSIMÉTRIE ABSOLUE POUR DES RAYONS X D'ÉNERGIE MOYENNE 23 keV ÉTALONNAGE DU SULFATE FERREUX.

Par Marcel FRILLEY et Marc LEFORT,
Laboratoire Curie et Laboratoire de Physique Nucléaire d'Orsay.

Résumé. — On a mesuré avec une chambre d'ionisation absolue la dose de rayonnement provenant d'une anticathode en étain dans un tube fonctionnant sous 100 kV. Dans des conditions d'absorption spécialement étudiées, on a pu déterminer la valeur du rendement radiochimique d'oxydation du sulfate ferreux en solution acide. Pour un rayonnement X d'énergie moyenne 23 keV, on trouve 15,1 ± 0,5 ions oxydés par 100 eV, valeur légèrement inférieure à celle des rayons γ du radiocobalt. On discute les variations de ce rendement en fonction de l'énergie des électrons.

Abstract. — We have measured with an absolute ionisation chamber the dose rate from an X-ray beam generated by an anode made of tin in an X-ray tube under 100 kV. The yield of the oxidised ferrous sulfate in aqueous sulfuric acid solutions was determined. For an effective mean energy of 23 keV, the value of 15,1 ± 0,5 ions oxidised for 100 eV was found, a figure slightly smaller than with radiocobalt γ rays. The dependence of this yield on the energy of the electrons is discussed.

On sait que la mesure de l'oxydation du sulfate ferreux en solution aqueuse d'acide sulfurique est une des méthodes chimiques de dosimétrie de rayons X ou γ les plus universellement adoptées [1]. D'autre part la densité linéaire des ionisations a une influence sur le rendement de nombreuses transformations chimiques induites par les rayonnements ionisants. Pour les ions ferreux, il a été établi que ce rendement restait indépendant du taux de perte d'énergie par unité de longueur de trajectoire, et donc de l'énergie des rayons X ou γ responsables de la création des électrons lorsque ce taux de perte était inférieur à environ 1 keV par micron. (Électrons Compton correspondant à des photons de plus de 200 keV.) La valeur de $15{,}5 \pm 0{,}3$ ions ferreux oxydés par 100 eV d'énergie absorbée semble bien établie, aussi bien pour les rayons γ du radiocobalt que pour des faisceaux d'électrons de 500 keV. Par contre lorsque le TEL augmente, pour des photoélectrons de 8 keV correspondant aux rayonnements K du cuivre, Cottin et Lefort [2] ont trouvé la valeur de $13{,}4 \pm 0{,}6$ unités G. Si l'on compare aux valeurs de 12,9 indiquées pour les rayons β du tritium [3] et de 11,0 pour les protons de 8,4 MeV [4], on voit que dans cette région, lorsque le taux de perte d'énergie moyen augmente de 1,1 keV/μ à 9 keV/μ, le rendement baisse de 15,5 à 11,0. La figure 1 représente cette variation du rendement d'oxydation des ions ferreux en fonction de $= \mathrm{d}E/\mathrm{d}X$ exprimé en kilovolts par micron.

Il nous a paru intéressant d'explorer la région dans laquelle la baisse de rendement commence à s'amorcer, c'est-à-dire aux environs de 2 keV par micron. En effet il se trouve qu'un grand nombre de travaux de chimie des radiations et de radiobiologie se fait avec des tubes à rayons X médicaux, fonctionnant sous une tension comprise entre 100 et 200 kV avec des anodes de tungstène. Les rayons produits ne sont, bien entendu, pas monochromatiques et présentent un spectre très étalé, de sorte qu'on ne peut guère définir de coefficient moyen d'absorption. Selon les conditions d'utilisation et

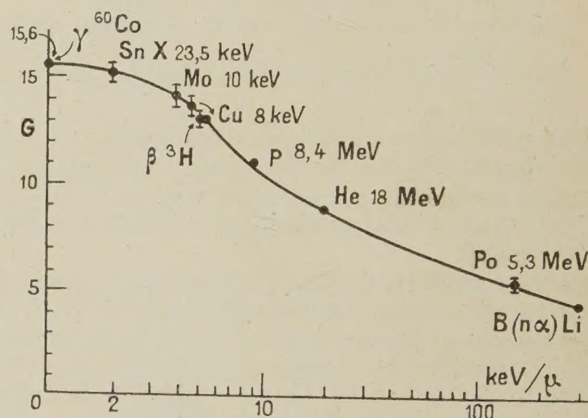


Fig. 1.

l'épaisseur de la préparation irradiée, les résultats de dosimétrie peuvent être très différents et il semble souhaitable d'être assuré de la valeur exacte d'un dosimétrie chimique, comme par exemple le sulfate ferreux en solution. Farmer et Weiss [5] ont trouvé avec des rayons X d'un tube fonctionnant sous 220 kV, $G = 16{,}5$, tandis que Swallow et al. [6], avec le même rayonnement ont indiqué plus récemment la valeur de 15,0. Ces auteurs ont utilisé des chambres d'ionisation dites « à paroi d'eau », elles-mêmes calibrées par rapport à une chambre absolue.

Nous avons recherché un rayonnement capable

de fournir des photoélectrons d'environ 20 keV et une proportion d'électrons Compton la plus faible possible, et nous avons pu faire ainsi des mesures de dosimétrie absolue directement avec une chambre d'ionisation Rogozinsky analogues à celles de Cottin et Lefort pour des rayons X de 10 keV.

1. Conditions d'utilisation du tube à rayons X. Anticathode d'étain. — Nous avons fait ce travail avec un tube démontable Beaudouin-Holweck, muni d'une anticathode en cuivre massif sur laquelle nous avons déposé électrolytiquement de l'étain de façon très adhérente. En augmentant progressivement la tension de fonctionnement du tube, nous avons fait des mesures d'absorption dans l'aluminium pour rechercher un coefficient

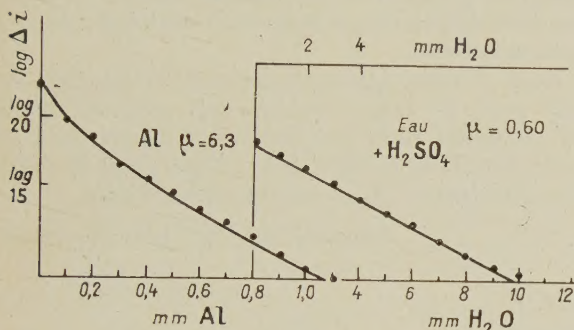


FIG. 2.

d'absorption constant. De telles conditions sont réalisées en filtrant par 2/10 de mm d'aluminium et en appliquant une tension de 100 kV. Le rayonnement obtenu alors est absorbé avec un coefficient constant $\mu/\rho = 2{,}33$ tout au long d'une épaisseur d'aluminium d'un millimètre (*fig.* 2). Il lui correspond une longueur d'onde moyenne d'environ 0,56 Angströms pour laquelle 98 % de l'énergie est cédée au milieu par des photoélectrons de 23,5 keV et 2 % par des électrons Compton d'énergie moyenne 2,2 keV [7]. Le parcours moyen de ces photoélectrons est de 11 microns dans l'eau et la perte d'énergie est donc d'environ 2 keV/μ dans ce milieu.

Avec un appareil à vis micrométrique permettant d'interposer des couches d'eau d'épaisseurs comprises entre 1/100 de mm et 20 mm, nous avons déterminé le coefficient d'absorption dans l'eau et dans les solutions acides de sulfate ferreux. La figure 2 indique la courbe d'absorption pour un rayonnement filtré par 2/10 d'aluminium. Le coefficient reste constant jusqu'à une épaisseur d'un cm d'eau et sa valeur est de 0,58. L'épaisseur correspondant à l'absorption moitié est de 11,5 mm.

2. Chambre d'ionisation et dosimétrie. — La chambre absolue de Rogozinsky [8] a été utilisée avec des électrodes écartées de 46 mm et une tension de 5 000 volts. Le diaphragme d'entrée avec un diamètre de 8 mm et était placé à 6 cm du foyer, et le courant d'ionisation était mesuré à l'aide d'un galvanomètre préalablement étalonné avec un montage potentiométrique. Pour un débit électronique dans le tube de 10 mA, on a trouvé une dose de 978 rœntgen-minute et pour 15 mA 1 380 R/minute.

3. Irradiation de solutions de sulfate ferreux. — Le dispositif d'irradiation est le même que celui déjà décrit [2]. Comme le rayonnement utilisé est plus dur, la correction due à l'absorption dans l'air est négligeable.

Nous avons irradié des solutions en sulfate ferreux de concentration 10^{-3} molaire et 0,4 normale en H_2SO_4 pour lesquelles le coefficient d'absorption est égal à 0,60, sous diverses épaisseurs comprises entre 5 et 10 mm.

La cuve d'irradiation a un diamètre de 2 cm et se trouvait placée sous le diaphragme de 8 mm. On fait la lecture du courant d'ionisation dans la chambre, avant de poser la cuve et après l'avoir enlevée. Les durées d'irradiation sont d'une heure. Le sulfate ferrique formé est dosé par spectrophotométrie à 304 mμ, dans des cuves thermostatées à 25 °C. Le coefficient d'extinction molaire est égal à 2 180 dans ces conditions. On a pris les précautions habituelles de pureté pour les solutions.

4. Calcul de la dose absorbée dans la solution de sulfate ferreux. — L'énergie absorbée par unité de masse de liquide, non tenu compte de l'absorption, est égale à $D_{0,1} = J.W.E_l/E_g$, où J est le nombre de paires d'ions par gramme d'air, W l'énergie nécessaire pour créer une paire d'ions, E_l/E_g le rapport des coefficients d'absorption photoélectrique des deux substances liquide-air (on néglige ici le rapport des coefficients d'absorption Compton). Pour 23 keV, E_l/E_g est voisin de 1,04.

Si l'on recueille un courant Δi u. e. s., le débit de dose *en surface* sera :

$$d_{0,1} = \Delta i . J . W . 1{,}04 \frac{0{,}001293}{\rho} \text{ ev.sec}^{-1}$$

ρ étant la densité de l'air au moment de l'expérience.

Sous une épaisseur x de liquide, la dose absorbée est

$$D = d_{0,1} \int_0^x e^{-\mu x} \,dx = d_{0,1} \frac{1 - e^{-\mu x}}{\mu}.$$

En prenant $W = 34$ eV, on trouve que l'énergie absorbée pendant le temps t par la solution de sulfate ferreux est :

$$Dt = 56{,}7 . 10^{12} . \frac{0{,}001293}{\rho} . \frac{1 - e^{-\mu x}}{\mu} . \Delta i . t \text{ en eV}$$

si Δi est exprimé en u. e. s. par seconde.

Le tableau suivant donne les valeurs trouvées pour différentes épaisseurs de liquide et les rendements obtenus.

Durée en secondes	Épaisseur en mm	Volume en cm^2	$e^{-\mu x}$	$\frac{1 - e^{-x\mu}}{\mu}$	*d.* optique	Nombre de molécules en 10^{16}	Δi u. e. s./sec.	$\frac{0,001293}{\rho}$	Dose en 10^{18} eV	G
3 600	5,1	1,60	0,740	0,434	0,268	11,8	8,165	1,08	0,78	15,1
3 600	7,0	2,20	0,656	0,572	0,248	15,4	8,165	1,08	1,03	15,0
3 600	9,0	2,83	0,582	0,700	0,245	19,0	8,165	1,08	1,25	15,2
3 600	10,0	3,14	0,549	0,750	0,238	20,5	8,165	1,08	1,35	15,2
3 600	5,1	1,60	0,740	0,434	0,385	17,0	11,50	1,10	1,12	15,1
3 600	7,0	2,20	0,656	0,572	0,370	22,5	11,50	1,10	1,48	15,2
3 600	9,0	2,83	0,582	0,700	0,350	27,0	11,50	1,10	1,80	15,0

La valeur moyenne de G ainsi obtenue est égale à $15,1 \pm 0,5$. Nous pensons que l'erreur sur μ est inférieure à 0,05 et l'erreur sur x de 0,004 cm.

$$\mu \, dx + x \, d\mu = 0,0524 \quad \text{et} \quad d\left(\frac{1 - e^{-\mu x}}{\mu}\right) \simeq \frac{2}{100}.$$

Les erreurs relatives sur Δi sont de l'ordre du 1/100 et sur la densité optique, également du 1/100.

Par suite :

$$dD/D \simeq 4/100.$$

Sur la figure 1, le point correspondant à $15,1 \pm 0,5$ a été indiqué. On peut voir que cette valeur se place de façon satisfaisante sur la courbe représentant le rendement en fonction du taux de perte d'énergie.

Nous pensons que cette détermination peut être utile pour les radiochimistes qui désirent irradier des solutions sous une épaisseur d'environ 1 cm, étant donnée la facilité de la préparation de dépôts très adhérents d'étain sur les anticathodes.

Manuscrit reçu le 7 novembre 1958.

BIBLIOGRAPHIE

[1] Revue récente. Miller (N.), Actions chimiques et biologiques des radiations. Tome II. Masson, Paris, 1956.
[2] Cottin (M.) et Lefort (M.), *J. Chim. Phys.*, 1956, **53**, 267.
[3] McDonell (W. R.) et Hart (E. J.), *J. Amer. Chem. Soc.*, 1954, **76**, 2121.
[4] Schuler (R. H.) et Allen (A. O.), *J. Amer. Chem. Soc.*, 1955, **77**, 507.
[5] Farmer (F. T.), Rigg (F.) et Weiss (J.), *J. Chem. Soc.*, 1954, 3285.
[6] Haybitte (J. L.), Saunders (L. D.) et Swallow (A. J.), *J. Chem. Phys.*, 1956, **25**, 1213.
[7] Voir Lea (D. E.), Action of radiations on living cells. Cambridge Un. Press, 1954. (p. 12 et 14).
[8] Rogozinski (A.), *J. Radiol. Electroradiol.*, 1935, **19**, 693

LE COEFFICIENT DE TEMPÉRATURE DE L'EFFET PHOTOÉLECTRIQUE DES MÉTAUX

Par A. MEESSEN,
Université de Louvain, Belgique.

Résumé. — Le coefficient de température du courant photoélectrique des métaux, est positif près du seuil photoélectrique, mais devient négatif pour la lumière bleue ou ultra-violette. L'explication en est possible en considérant un effet photoélectrique de surface avec un travail d'extraction dépendant linéairement de la température T (effet du second ordre). Cette hypothèse est utilisée couramment pour l'émission thermoionique. L'accord entre les courbes expérimentales et théoriques demande cependant en plus les hypothèses suivantes :

1) Le travail d'extraction dépend également de T^2 (effet du troisième ordre)

$$\Phi = \Phi_0 + \delta_0 T + \delta_1 T^2.$$

Cela est confirmé par la proportionnalité du coefficient de température du travail d'extraction et du coefficient de dilatation thermique, qui introduit des termes du même ordre de grandeur que ceux trouvés par la confrontation précédente.

2) La formule de Fowler pour le courant photoélectrique près du seuil n'est qu'une première approximation d'une formule semblable à

$$i = CT^2[\varphi(x) - T\Phi(x) + \ldots]$$

qui doit être appliquée quand T et x deviennent assez grands.

Abstract. — The temperature coefficient of the photoelectric current is positive near the threshold, but becomes negative towards the blue and ultra-violet. This is due to a surface photoelectric effect whose work function is linearily temperature dependant (second order effect). This assumption has already been introduced for the thermionic emission process. Agreement between experimental and theoretical curves requires however the following assumptions :

1) The work function depends also on T^2 (third order effect). This is corroborated by the proportionnality between the temperature coefficient of the work function and the thermal expansion coefficient.

2) The Fowler formula for the photoelectric current becomes inaccurate when T and x increase and has to be replaced by an other expression, containing a T^3 term.

Introduction. — Nous avons mis en évidence précédemment [1] l'existence d'un effet de température dans l'efficience photoélectrique des photocathodes $SbCs_3$ des photomultiplicateurs usuels. Cet effet consiste dans une augmentation de l'efficience pour le rouge quand la température augmente, tandis qu'on observe une diminution pour la lumière bleue. Pour une fréquence intermédiaire le coefficient de température K s'annule.

$$K = \frac{1}{i}\frac{\mathrm{d}i}{\mathrm{d}T}. \qquad (1)$$

Afin de trouver une explication théorique de ce phénomène, nous avons voulu étudier d'abord le cas des surfaces métalliques pures ou composées. Une série de mesures effectuées pour des métaux purs, montrent en effet un comportement analogue, comme l'indique la figure 1. Comme pour le $SbCs_3$ le coefficient de température K est positif vers le rouge ($\nu < \nu_c$) et négatif vers le bleu ($\nu > \nu_c$). Au lieu de rattacher cet effet de température à un effet de surface pour le bleu et un effet de volume pour le rouge, comme cela a été supposé précédemment, on peut rattacher l'effet de température pour les métaux, simplement à une variation du travail d'extraction avec la température.

$$\Phi = \Phi_0 + \delta T = \Phi_0 + \alpha k T. \qquad (2)$$

On ne considère donc que l'effet photoélectrique de surface.

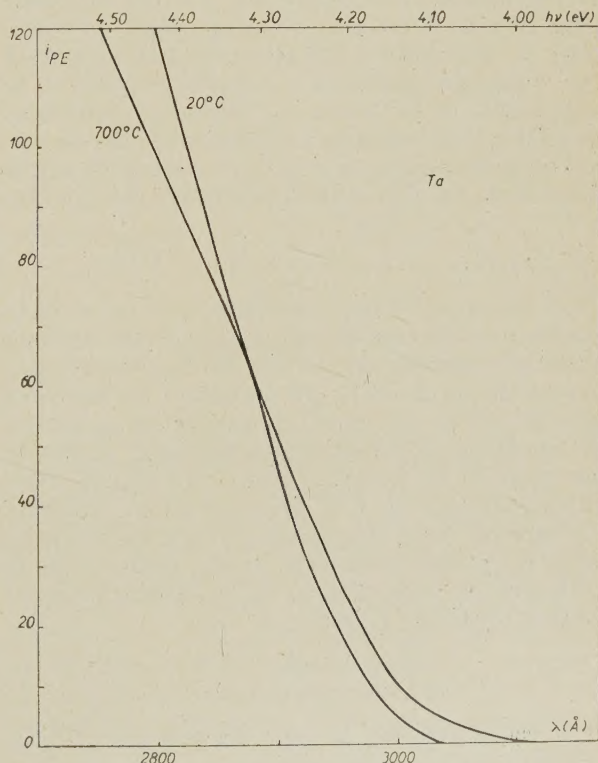


Fig. 1. — Courbes de réponse spectrale du Ta à 20 °C et 700 °C.

Le modèle — La figure 2 donne le modèle utilisé dans les théories de l'émission électronique par des surfaces métalliques. La densité des niveaux d'énergie ε est donnée par

$$n(\varepsilon) = 4\pi h^{-3}(2m)^{3/2} \varepsilon^{1/2}. \quad (3)$$

La distribution d'énergie des électrons à une température T s'obtient en multipliant $n(\varepsilon)$ par la fonction de distribution de Fermi-Dirac :

$$f(\varepsilon) = 1/[1 + \exp(\varepsilon - \mu)/kT] \quad (4)$$

μ est le niveau de Fermi, déterminé par le nombre total d'électrons libres par unité de volume : n

$$\mu = (h^2/2m)(3n/8\pi)^{2/3}. \quad (5)$$

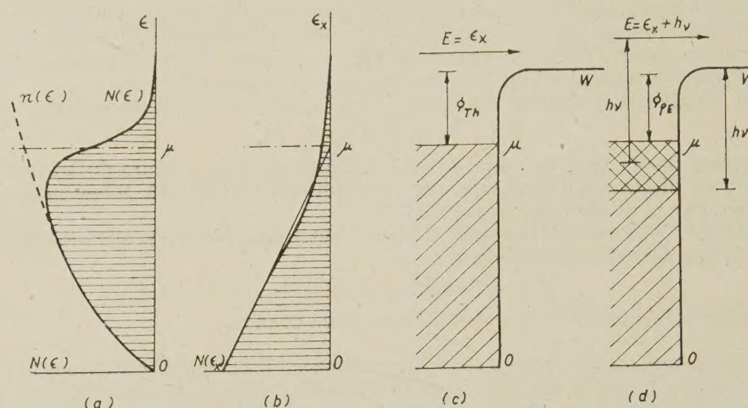


Fig. 2. — Modèle considéré pour l'émission électronique des surfaces métalliques.

La distribution d'énergie des électrons

$$N(\varepsilon)\, d\varepsilon = n(\varepsilon) f(\varepsilon)\, d\varepsilon$$

est représentée à la figure 2*a*. Au lieu de considérer $N(\varepsilon)\, d\varepsilon$ il est plus utile cependant de considérer la distribution des électrons par rapport à leur d'énergie cinétique ε_x qui correspond à la composante de la vitesse v_x, normale à la surface. En effet si l'on considère uniquement l'effet de surface on peut négliger tout ce qui concerne les autres dimensions. La figure 2*b* représente la distribution

$$N(\varepsilon_x)\, d\varepsilon_x = 4\pi m h^{-3} kT \ln\left(1 + \varepsilon^{\frac{\mu-\varepsilon_x}{kT}}\right) d\varepsilon_x. \quad (6)$$

Les électrons libres considérés sont ceux de la bande de conduction du métal, se trouvant dans un potentiel constant. La surface est représentée par un saut de potentiel W qui maintient les électrons dans le métal. On peut considérer un potentiel discontinu ou un potentiel de force image ou encore une barrière de potentiel due à un champ électrique extérieur ou à la présence d'ions adsorbés à la surface. Nous supposons qu'on a un potentiel voisin du potentiel de force image. Dans ce cas le coefficient de transmission de la surface pour un électron d'énergie E sera

$$\begin{aligned} D &\simeq 1 \quad \text{pour } E > W \\ D &= 0 \quad \text{pour } E < W \end{aligned} \quad (7)$$

où W est la hauteur du saut de potentiel [5]. Le travail d'extraction sera défini par

$$\Phi = W - \mu \quad (8)$$

Émission thermoionique — Le courant thermoionique [2-4] est donné simplement par

$$i_{\text{Th}} = \int_W^\infty N(\varepsilon_x)\, d\varepsilon_x$$

ce qui donne

$$i_{\text{Th}} = AT^2 \exp(-\Phi/kT) \quad \text{avec} \quad A = 120 \text{ amp/cm}^2 \text{ deg}^2. \quad (9)$$

Si maintenant le travail d'extraction dépend de la température d'après (2) on aura

$$i_{\text{Th}} = A'T^2 \exp(-\Phi_0/kT) \quad \text{avec} \quad A' = A \exp(-\alpha). \quad (10)$$

Le coefficient de température δ. — *a*) Pour les surfaces métalliques pures. — Le tableau I contient les valeurs de A' mesurées [4] pour différentes surfaces métalliques pures. On a généralement

$$1 < A' < 120 \quad (\text{amp/cm}^2 \text{ deg}^2).$$

Le coefficient de température $\delta = \alpha k$, est compris entre zéro et $4 10^{-4}$ eV/degré. En général il sera de l'ordre de 10^{-4}, nous avons donc un effet du second ordre :

$$\emptyset = \emptyset_0 + \delta T \simeq 4 + 10^{-4}\, T \quad (\text{eV}). \quad (11)$$

b) Pour les surfaces composées. — Lorsqu'une certaine quantité d'atomes ou d'ions sont adsorbés sur une surface métallique, le travail d'extraction Φ_0 et le coefficient de température δ seront changés. Les tables [6] montrent d'ailleurs

que le domaine de variation de A' et de δ est bien plus large que pour les métaux purs.

Si σ est la densité des atomes ou ions adsorbés, σ_0 étant la densité pour un recouvrement en couche

TABLEAU I

MÉTAL	A' (amp/cm² deg²)	Φ_{Th} (eV)	Φ_{PE} (eV)	α	δ (10^{-4} eV/deg)
C	30	4,34	—	1,38	1,19
	15	4,39	—	2,08	1,79
Cr	48	4,60	4,37	0,92	0,79
Co	41	4,41	—	1,06	0,89
Fe	26	4,48	—	1,53	1,52
Mo	55	4,20	4,35	0,79	0,68
	115	4,37	4,12	0,04	0,035
	51	4,17	—	0,85	0,73
	24	4,33	—	1,59	1,37
Ni	30	4,61	4,87	1,39	1,20
Pt	32	5,32	—	1,32	1,14
Rh	33	4,80	—	1,29	1,11
Ta	37	4,10	—	1,18	1,02
	55	4,19	4,05	0,78	0,67
W	75	4,55	—	0,47	0,40
	72	4,52	—	0,51	0,44
	38	4,45	—	1,15	0,99
	22	4,53	4,49	1,70	1,46
	60	4,52	—	0,69	0,60

monoatomique, nous avons un recouvrement $\theta = \sigma/\sigma_0$. Soit μ_0 le dipôle électrique à 0 °K par ion ou atome adsorbé, alors le travail d'extraction change à cause de la couche dipolaire déposée sur la surface, d'après la formule de Langmuir.

$$\Delta\Phi_0 = 2\pi\theta\sigma_0\,\mu_0.$$

Le signe de $\Delta\Phi_0$ dépend du signe de μ_0. L'adsorption d'atomes électropositifs diminue Φ_0 (par ex. : Cs sur Pt, Th sur W, etc.), par contre des atomes électro-négatifs augmentent le travail d'extraction (par ex. : oxydation du métal). Si le moment dipolaire a un coefficient de température δ', $\Delta\Phi_0$ aura un coefficient de température δ''

$$\mu = \mu_0 + \delta' T\,; \qquad \delta'' = 4\pi\theta\sigma_0\,\delta'.$$

Pour l'adsorption d'atomes électropositifs nous aurons donc un travail d'extraction

$$\Phi = (\Phi_0 - \Delta\Phi_0) + (\delta - \delta'')\,T \tag{12}$$

où $\Delta\Phi_0$ et δ'' s'annulent avec θ, pour une surface métallique pure.

Le coefficient de température apparent $(\delta - \delta'')$ dépend du recouvrement θ. En effet, δ' changera de signe suivant les valeurs de θ. Suivons le raisonnement de de Boer [7]. Pour un faible recouvrement ($\theta \ll \theta_m$) on adsorbe des ions positifs à la surface. Le moment dipolaire est formé par la charge plus de l'ion et sa charge image dans le métal, ainsi que du dipôle induit dans l'ion par cette charge image comme l'indique la figure 3*a*. On voit directement que le dipôle μ augmente quand la température augmente, donc $\delta' > 0$.

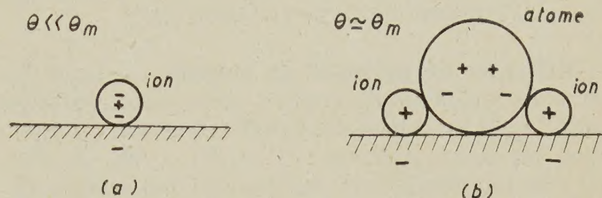


FIG. 3. — Formation de la couche dipolaire lors de l'adsorption d'atomes et d'ions sur une surface métallique.

Pour un recouvrement assez dense par contre ($\theta \simeq \theta_m$), on adsorbe des atomes près des ions. Le dipôle induit dans l'atome par les ions voisins, diminue quand la température augmente, donc $\delta' < 0$. Voir la figure 3*b*.

Pour un recouvrement assez grand, δ' et δ'' seront négatifs, le coefficient apparent $\delta - \delta''$ sera donc positif. Mais pour un recouvrement assez petit, δ' peut devenir assez grand pour que $\delta'' > \delta$, le coefficient apparent peut donc devenir négatif.

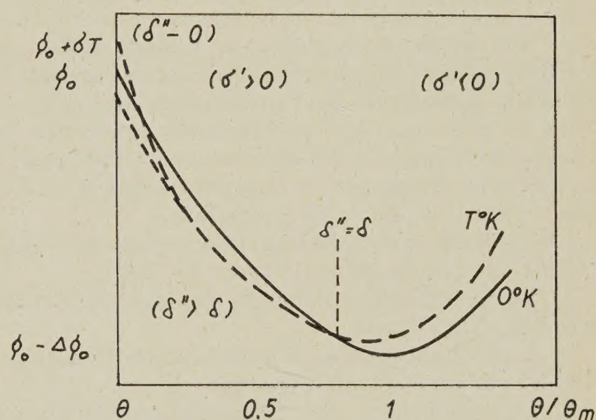


FIG. 4. — Le travail d'extraction des surfaces composées en fonction du recouvrement.

La figure 4 résume cette situation. Pour $\theta = 0$, le coefficient apparent se réduit cependant à δ.

Ceci peut être l'explication d'une contradiction discutée depuis des années. Nottingham [8] avait mesuré A' et partant δ pour une surface de W avec un recouvrement variable de Th. δ variait entre $-4{,}3\ 10^{-5}$ eV/degré pour $\theta = 0$ et $30\ 10^{-5}$ eV/degré pour $\theta = \theta_m$. A l'encontre des mesures de A' par d'autres auteurs, on a donc que $\delta < 0$ pour le métal W pur. D'après la discussion précédente, on a mesuré un coefficient de température apparent qui peut être négatif pour θ assez petit. L'extrapolation vers la valeur du coefficient pour le métal pur ($\theta = 0$) n'est pas nécessairement bonne. Not-

tingham [9] a introduit des arguments spéciaux pour justifier un $\delta < 0$.

Notons encore que δ peut avoir des valeurs différentes pour différentes faces crystallines, comme l'ont montré Dyke et Dolan [10].

Différence de potentiel de contact. — La différence de potentiel de contact entre deux surfaces métalliques est due au travail d'extraction différent pour les deux surfaces : $V = \emptyset_1 - \emptyset_2$. Si l'on varie la température d'une des surfaces seulement, on pourra mesurer ainsi le coefficient de température du travail d'extraction de celle-ci. On doit corriger éventuellement pour la f. e. m. de Seebeck.

Davisson [11] trouvait pour une surface de W thoriée une valeur $\delta = 4{,}3\ 10^{-5}$ eV/degré. Langmuir [12] trouve une différence entre surface activée et désactivée de $3{,}6\ 10^{-4}$ eV/degré. Potter [13] trouve une valeur moyenne $\delta = 6{,}5\ 10^{-5}$ eV/degré, pour des surfaces de W thorié.

Effet photoélectrique. — Tamm et Schubin [14] ont distingué un effet photoélectrique de volume et un effet photoélectrique de surface. En effet la conservation simultanée de l'énergie et de l'impulsion n'est pas possible pour des électrons libres, mais uniquement pour des électrons en interaction avec le saut de potentiel à la surface (effet de surface) ou pour des électrons en interaction avec le potentiel périodique du réseau (effet de volume). Dans la suite nous ne considérerons que l'effet de surface, parce que l'effet de volume est négligeable jusqu'à une fréquence ν' bien supérieure à la fréquence limite ν_0 de l'effet de surface.

Une théorie exacte de l'effet de surface nécessite l'étude des points suivants (voir *fig.* 2*d*) :

1) La distribution d'énergie des électrons dans le métal, $N(\varepsilon_x)\,\mathrm{d}\varepsilon_x$ (6).

2) La probabilité $s(\varepsilon_x, \nu)$ d'absorption d'un quantum $h\nu$ par un électron d'énergie ε_x,

3) Le coefficient de transmission $D(E)$ où $E = \varepsilon_x + h\nu$, donné par (7) par exemple. Le courant photoélectrique sera donné par

$$i_{\mathrm{PE}} = \int_{W-h\nu}^{\infty} N(\varepsilon_x)\, s(\varepsilon_x, \nu)\, D(\varepsilon_x + h\nu)\, \mathrm{d}\varepsilon_x = \int_{W-h\nu}^{\infty} N(\varepsilon_x)\, s(\varepsilon_x, \nu)\, \mathrm{d}\varepsilon_x. \quad (13)$$

a) Théories de la distribution d'énergie $N(\varepsilon_x)$. — Fowler [15] et ensuite Du Bridge [16] ont calculé i_{PE} à partir de $N(\varepsilon_x)$. En supposant que (7) est vérifié et que $s(\varepsilon_x, \nu) \simeq \mathrm{C^{te}}$ quand la fréquence ν est assez proche de la fréquence limite ν_0,

$$h\nu_0 = \Phi = W - \mu$$

et quand l'énergie ε_x est proche de l'énergie de Fermi μ.

Fowler considère $N(\varepsilon_x)$ proprement dit, c'est-à-dire le nombre d'électrons d'énergie ε_x par unité de volume du métal. Du Bridge considère le nombre d'électrons qui atteignent par sec l'unité de surface du métal. D'autres hypothèses comme celle de Nottingham [17] sont également possibles. L'intégration (13) donne alors

$$i_{\mathrm{PE}} = CT^2\, \varphi(x) \quad \text{avec} \quad x = \frac{h\nu - h\nu_0}{kT}. \quad (14)$$

La « fonction de Fowler » peut s'écrire

$$(x \geqslant 0): \quad \varphi(x) = \frac{\pi^2}{6} + \frac{x^2}{2} - \sum_1^{\infty} (-1)^{n+1}\, e^{-nx}/n^2$$

$$(x < 0): \quad \varphi(x) = \sum_1^{\infty} (-1)^{n+1}\, e^{nx}/n^2. \quad (15)$$

Le coefficient $C \simeq \mathrm{C^{te}}$.

Cette théorie de Fowler a été comparée très souvent avec l'expérience. L'accord est très satisfaisant. La formule de Fowler permet de trouver le travail d'extraction $h\nu_0$ en portant la courbe de Fowler

$$\log i_{\mathrm{PE}}/T^2 = \mathrm{C^{te}} + \log \varphi\left(\frac{h\nu}{kT} - \frac{h\nu_0}{kT}\right)$$

en fonction de $h\nu/kT$.

b) Théories de la probabilité d'excitation $s(\varepsilon_x, \nu)$. — Une série d'auteurs [18] ont essayé de calculer la probabilité d'excitation $s(\varepsilon_x, \nu)$. Tous ces calculs sont basés sur la méthode de Wentzel : considérer la fonction d'onde d'un électron libre du métal, d'énergie cinétique donnée et d'autre part le vecteur électrique de l'onde lumineuse incidente, qui est amortie quand elle pénètre la surface du métal. Le calcul de la perturbation de l'un sur l'autre, donne finalement la probabilité d'excitation cherchée.

Ces théories ont pour objet d'expliquer la présence du maximum dans la distribution spectrale de l'effet photoélectrique de surface, la dépendance de l'état de polarisation de la lumière ainsi que de l'angle d'incidence pour une surface plane. L'accord entre ces théories et l'expérience n'est jamais parfaite du point de vue quantitatif, mais est suffisante du point de vue qualitatif pour montrer la dépendance de tel ou tel paramètre. D'ailleurs la comparaison avec l'expérience n'est possible que pour les métaux alcalins ; pour les autres métaux il n'y a qu'une faible portion de la distribution spectrale qui se place dans la région de lumière visible ou infrarouge mesurable.

Toutes ces théories négligent, dans leur stade final, l'effet de la température qui s'introduit par le facteur de Fermi (4), tout le poids étant mis sur l'influence des autres paramètres.

Nous trouvons cependant quelques études qui réunissent les deux points de vue précédents et qui arrivent à une extension de la théorie de Fowler

La théorie de Fowler suppose en effet, que la probabilité d'excitation $s(\varepsilon_x, \nu) \simeq C^{te}$, pour toute énergie ε_x assez proche de μ. Waterman [19] a montré que si $s(\varepsilon_x, \nu) \sim \varepsilon_x^r$, avec un coefficient r inconnu, l'expression (15) reste vraie en première approximation. On garde donc la dépendance en T et x.

D'autre part, Houston [20] a supposé que la probabilité d'excitation peut être développée en série de Taylor, pour $\varepsilon_x \geqslant W - h\nu$:

$$S(\varepsilon_x, \nu) = S(W - h\nu, \nu) + \varepsilon_x S'(W - h\nu, \nu) + \dots$$

En tenant compte de la fonction de Fermi (4) et du coefficient de transmission (7), il obtient après l'intégration (13) une formule qui peut être mise sous la forme

$$i_{PE} = CT^2[\varphi(x) - T\Phi(x) + \dots]. \qquad (16)$$

On retrouve donc en première approximation, la formule de Fowler (14). Pour $x \gg 0$: $\varphi(x) \sim x^2$ et $\Phi(x) \sim x^3$. Il y aura un écart avec la formule de Fowler pour T et x assez grands. Notons que la formule (16) correspond au courant de saturation, c'est-à-dire tous les électrons émis sont collectés. Dans plusieurs cas on a observé un écart entre les points expérimentaux et la courbe de Fowler [21, 22]. Le signe dans (16) doit être moins, si l'on considère la figure donnée par Cashman [22] où la courbe expérimentale se place en dessous de la courbe de Fowler pour x assez grand.

Le coefficient de température de l'efficience photoélectrique des métaux. — *a*) Théorie. — Ce coefficient de température défini par (1), peut être calculé par dérivation de la formule de Fowler :

$$K = \frac{2}{T} + \frac{\mathrm{d}x}{\mathrm{d}T}\frac{\varphi'(x)}{\varphi(x)}$$

ou

$$KT = 2 - x\frac{\varphi'(x)}{\varphi(x)}. \qquad (17)$$

Dans ce cas K sera toujours positif. Mais si le travail d'extraction dépend de la température d'après la formule (2), où α est une constante, on a

$$h\nu_0 = h\nu_{00} + \alpha kT$$

et

$$x = x_0 - \alpha \quad \text{avec} \quad x_0 = (h\nu - h\nu_{00})/kT.$$

On aura donc

$$KT = 2 - x_0\frac{\varphi'(x_0 - \alpha)}{\varphi(x_0 - \alpha)} \qquad (18)$$

cette formule se réduit à (17) pour $\alpha = 0$.

La figure 5 donne les courbes théoriques (17) et (18) pour différentes valeurs de α. Si $\alpha > 0$, K change de signe, les courbes KT passent par l'axe des x pour $x = x_c$, donc pour une fréquence ν_c. La connaissance de x_c permet de déterminer α d'après la figure 6.

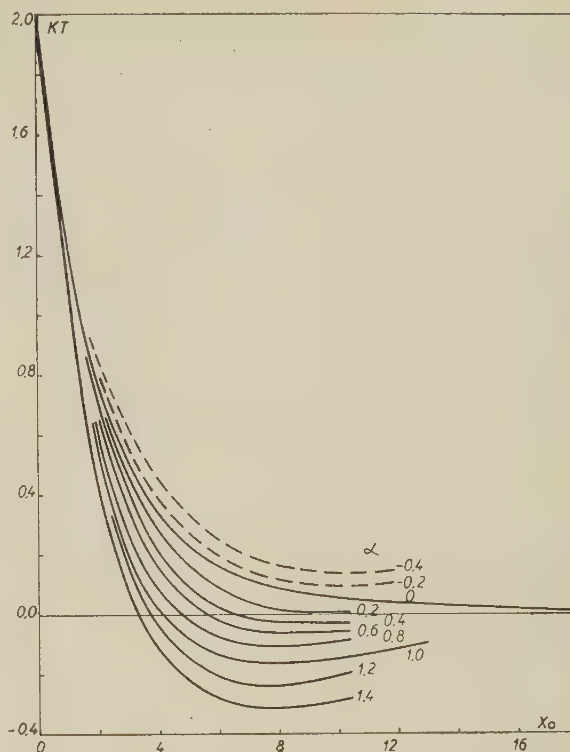


Fig. 5. — Courbes théoriques (18) donnant le coefficient de température K de l'efficience photoélectrique en fonction de la température T, de $x_0 = (h\nu - h\nu_{00})/kT$ et du coefficient de température α.

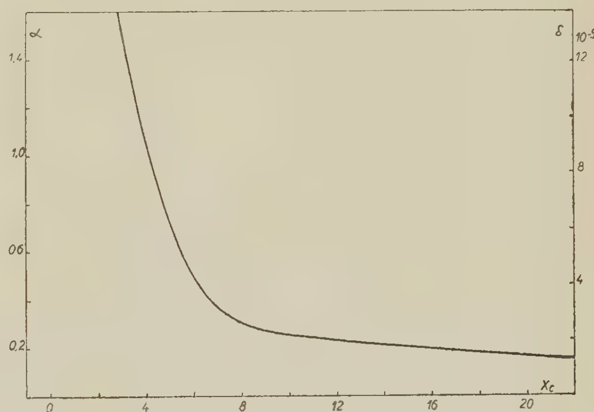


Fig. 6. — Le coefficient de température α du travail d'extraction en fonction du point d'intersection $x_0 = x_c$.

b) Comparaison avec l'expérience. — Jusqu'à présent l'influence du coefficient de température du travail d'extraction, sur l'émission photoélectrique n'a jamais été reconnue nettement. La raison se trouve dans la petitesse de l'effet du second ordre (11). Dans le domaine des températures où l'on étudie l'effet photoélectrique

$$\Phi = h\nu_0 \simeq \Phi_0 = h\nu_{00}.$$

Or la méthode de Fowler, qui permet la détermination de $h\nu_0$, laissera subsister en général une erreur expérimentale qui masque entièrement l'effet de température dans $h\nu_0$.

Il n'y a que quelques rares tentatives pour déterminer cet effet, poussant à l'extrême la précision de la méthode de Fowler. Cashman et Jaminson [23] ont déduit pour le Ba à 20 °C et 120 °C un coefficient $\delta = 1{,}4\ 10^{-5}$ et $2{,}2\ 10^{-5}$ eV/degré respectivement dans deux expériences différentes. Cardwell [24] a fait une mesure analogue pour le Ta.

En fait nous pouvons dire que la méthode de Fowler était peu appropriée pour mettre en évidence le coefficient de température α. On pouvait donc dire que l'effet de température dans l'émission photoélectrique était sans importance.

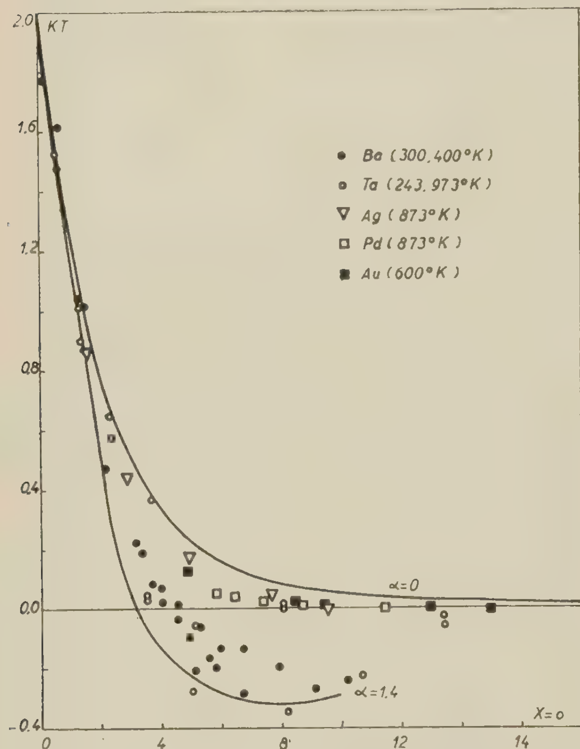


FIG. 7. — Les points expérimentaux pour différents métaux.

Ce n'est cependant rien d'autre qu'un effet de perspective, car tout dépend de la façon de mettre en graphique les résultats expérimentaux. Dans la méthode de Fowler on reporte le courant photoélectrique pour une température T, dans la figure 5 on reporte la variation (K) du courant photoélectrique avec la température, autour d'une température T.

L'ensemble des résultats expérimentaux pour des métaux, donnant le courant photoélectrique à différentes températures [23-25] est reporté dans la figure 7, en comparaison avec les courbes (18) pour $\alpha = 0$ et 1,4. L'accord se révèle être très satisfaisant.

Un examen plus approfondi montre cependant que la formule (18) n'est pas suffisante pour décrire ce qui se passe. En effet, on trouve sur la figure 8 les points expérimentaux pour le Ba autour de 300 °K et 400 °K [23] où l'on constate :

1) que la courbe des points expérimentaux se déplacée vers le bas quand la température augmente. Le point $x_0 = x_c$ se déplace vers la gauche. Ce point ne permet plus une détermination univoque de α d'après la figure 6. Le tableau II résume les valeurs de α déterminées par cette méthode ;

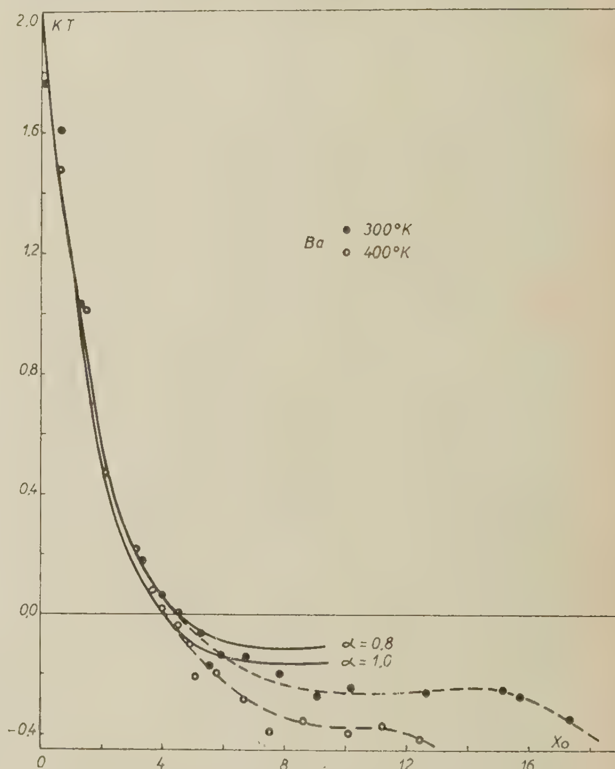


FIG. 8. — Les points expérimentaux pour le Ba à deux températures différentes.

2) que pour x_0 assez grand ($x_0 > 5$ pour le Ba) les courbes expérimentales s'écartent nettement des courbes théoriques. Au lieu de converger vers zéro, KT diverge vers les valeurs négatives ;

3) que l'accord entre les courbes expérimentales et les courbes théoriques est d'autant mieux qu'on s'approche du seuil. $x_0 \to 0$;

4) que pour $x_0 = 0$ on a toujours $KT = 2$. Cette méthode permet donc la détermination du travail d'extraction $h\nu_{00}$. Il suffit de porter KT en fonction de $h\nu/kT$ et de faire $KT = 2$ pour $x_0 = 0$ par un glissement latéral, qui donnera $h\nu_{00}/kT$.

On observe le même phénomène pour le Ta dans la figure 7.

TABLEAU II

MÉTAL	AUTEURS	T (°K)	$h\nu_0$ (eV)	$h\nu_c$ (eV)	x_c	α	δ (10^{-5}/°K)	$d\alpha/dT$ (10^{-3}/°K)
Au	Morris	600	4,84	5,40	10	0,26	2,24	—
Ag	Winch	873	4,75	5,50	10	0,26	2,24	—
Ta	Cardwell	293	4,05	4,30	10	0,26	2,24	
		973	4,05	4,38	4	1,05	9,0	1,1
Na/Pt	Suhrmann	293	3,75	4,60	34	0,10	0,86	—
Pd	Du Bridge	873	4,90	5,72	11	0,25	2,25	—
Ba	Cashman	300	2,50	2,63	4,6	0,85	7,30	
		400	2,50	2,59	4,2	0,99	8,50	1,4

c) HYPOTHÈSES POSSIBLES. — 1) La formule (18) est déduite de la formule de Fowler (14), en supposant que C et α sont des constantes indépendantes de la température. Si C dépendait de la température, on devrait ajouter à (18) un terme indépendant de x.

La courbe théorique glisserait dans son ensemble vers le haut ou vers le bas, ce qui ne correspond pas aux courbes expérimentales.

2) Si α dépend de la température, soit

$$\alpha = \alpha_0 + \frac{d\alpha}{dT} T \qquad (19)$$

on obtient au lieu de l'équation (18)

$$KT = 2 - \left(x_0 + \frac{d\alpha}{dT} T\right) \frac{\varphi'(x_0 - \alpha_0 - (d\alpha/dT)\,T)}{\varphi(x_0 - \alpha_0 - (d\alpha/dT)\,T)}. \qquad (20)$$

La figure 9 donne, pour illustration de cette formule, les courbes correspondantes à $\alpha_0 = 0$ et différentes valeurs de $d\alpha/dT$. On voit que cette hypothèse permet d'expliquer le glissement des courbes qui fait que x_c diminue quand T augmente.

3) Si la formule de Fowler (14) devait être remplacée par une formule analogue à (16), on obtiendrait en supposant α constant :

$$KT = 2 - \frac{x_0\,\varphi'(x) - T(x_0\,\Phi'(x) - \Phi(x))}{\varphi(x) - T\Phi(x)} \qquad (21)$$

où $x = x_0 - \alpha$. Pour T et x petit cette formule se réduit à (18). Elle introduit explicitement la variable T et on montre facilement que x_c diminue quand la température augmente.

Notons que les deux dernières hypothèses, avec les formules (20) et (21) donnent des courbes qui convergent vers l'axe $KT = 0$ quand x_0 tend vers l'infini. La divergence des courbes expérimentales, pourrait être due à un effet de volume qui se superpose à l'effet de surface quand on s'écarte assez du seuil photoélectrique.

Pour une estimation de l'ordre de grandeur de $d\alpha/dT$ on utilisera les valeurs de α du tableau II. On trouve $d\alpha/dT = 1{,}4\ 10^{-3}$/degré et $1, 10^{-3}$/degré respectivement pour le Ba et le Ta. La deuxième hypothèse (19) revient à supposer un effet du troisième ordre, qu'on n'a pas encore considéré jusqu'à présent :

$$\Phi = \Phi_0 + \alpha kT + d\alpha/dT\,.\,kT^2 \simeq 4 + 10^{-4}\,T + 10^{-7}\,T^2. \qquad (22)$$

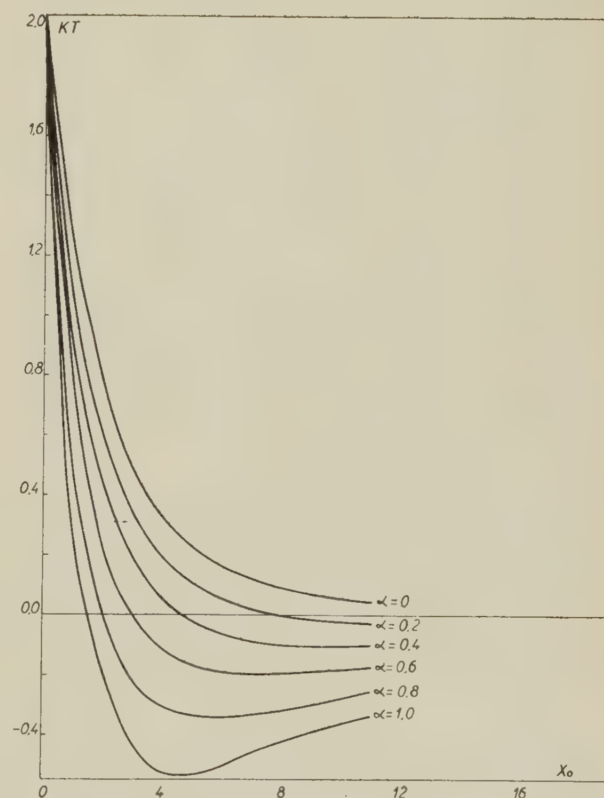


FIG. 9. — Courbes théoriques (20) pour $\alpha = \alpha_0 + \frac{d\alpha}{dT} T$ avec $\alpha_0 = 0$ et différentes valeurs de $d\alpha/dT$.

Nous montrerons plus loin que l'introduction d'un terme en T^2 doit être considéré comme normal, tout comme il en est pour le coefficient de dilatation cubique.

d) Remarques. — Les courbes de réponse spectrale expérimentales [23-25] tombent à zéro pour une certaine longueur d'onde λ_0, qui était prise anciennement comme seuil de l'effet photoélectrique. λ_0 dépend très nettement de la température comme le montre la figure 1 pour le Ba. Cela ne permet cependent pas de conclure comme on l'a fait souvent que le travail d'extraction photoélectrique varie avec la température. En effet la courbe de Fowler aux différentes températures se superpose très bien, montrant qu'il ne s'agit là que de l'effet de la distribution de Fermi-Dirac des électrons du métal. A température plus élevée il y a des électrons de plus grande énergie, qui peuvent être émis pour une fréquence $\nu < \nu_0$. Le vrai travail d'extraction (8) reste constant dans les limites des erreurs expérimentales de la méthode de Fowler.

Cashman [26] avait déjà remarqué une corrélation entre le point d'intersection des courbes de réponse spectrale à différentes températures comme à la figure 1 et le coefficient α. La simplification de son calcul n'a cependant pas pu mettre en évidence les hypothèses que nous venons de citer.

Dans la figure 5 on voit que si $\alpha \leqslant 0$ il n'y aura pas de point d'intersection des courbes de réponse spectrale à différentes températures. Un tel cas a été observé pour le K [27].

Pour une surface composée, tout ce que nous venons de dire reste applicable, si le coefficient de transmission (7) n'est pas sérieusement modifié par la couche dipolaire adsorbée à la surface [28]. Notons cependant que si le recouvrement n'est pas complet et que l'adsorption se fait par groupes d'ions ou d'atomes, le travail d'extraction photoélectrique et le travail thermoionique ne seront plus égaux l'un à l'autre, comme l'a montré King [29].

Le coefficient de température δ dépend de la température. — *a*) δ est proportionnel au coefficient de dilatation thermique. — Le travail d'extraction (8) dépend de W et de μ, il varie donc avec la température si ceux-ci dépendent de la température. Or W et μ dépendent du volume du métal, et celui-ci se dilate quand la température augmente. Par (5) on a

$$\mu \sim n^{2/3} \sim v^{-2/3} \tag{23}$$

car le nombre d'électrons libres par unité de volume $n = z/v$, si z est le nombre d'électrons libres par atome et si $v = D/M$ est le volume par atome du métal, c'est-à-dire la densité divisé par la masse spécifique.

Pour W on ne peut pas donner une formule rigoureuse. Schottky [30] avait introduit l'idée du potentiel de la force image

$$W = \frac{300\, e}{2\, r_0};$$

où r_0 est de l'ordre de grandeur des dimensions interatomiques ($r_0 \sim v^{1/3}$). La formule de Schottky s'est révélée très puissante.

Rother et Bomke [31] ont montré empiriquement qu'on a pour une série de métaux

$$W = C(z/v)^{1/3}$$

avec $C = 12{,}6$ ou $16{,}3$. La critique de Becker [3] montre qu'en fait C fluctue entre ces deux valeurs. Bomke [32] a montré également que $W \sim kZ^{1/4}$, mais le coefficient de compressibilité $k \sim v^{4/3}$. Dans tous ces cas nous avons

$$W \sim v^{-1/3} \tag{24}$$

qui sera certainement une bonne approximation pour un même corps dont le volume se dilate suivant

$$v = v_0(1 + 3\gamma T)$$

γ est le coefficient de dilatation linéaire, 3γ le coefficient de dilatation cubique. Nous avons par (23) et (24) :

$$\frac{1}{\mu_0}\frac{\mathrm{d}\mu}{\mathrm{d}T} = -2\gamma\,; \qquad \frac{1}{W_0}\frac{\mathrm{d}W}{\mathrm{d}T} = -\gamma$$

où μ_0 et W_0 correspondent à $T = 0$ °K, tout comme v_0.

Il est facile de déduire maintenant

$$\frac{\mathrm{d}\Phi}{\mathrm{d}T} = \frac{\mathrm{d}W}{\mathrm{d}T} - \frac{\mathrm{d}\mu}{\mathrm{d}T}$$

$$\frac{1}{\Phi_0}\frac{\mathrm{d}\Phi}{\mathrm{d}T} = \gamma\left(\frac{2-r}{r-1}\right); \qquad r = W_0/\mu_0$$

ou

$$\delta = \frac{\mathrm{d}\Phi}{\mathrm{d}T} = \gamma\Phi_0\, g(r)\,; \qquad g(r) = \frac{2-r}{r-1}. \tag{25}$$

La fonction $g(r)$ est représentée à la figure 10. Rosenfeld et Witmer [33] ont mesuré expérimentalement W pour certains métaux par la mesure du coefficient de réflection électronique. Avec la valeur mesurée pour le travail d'extraction Ø et des hypothèses plausibles sur le nombre d'électrons libres par atome, on peut calculer les valeurs de r. On trouve des valeurs entre 1,25 et 1,60. Les valeurs de r déduites des valeurs δ du tableau I fluctuent également dans cette région. Nous pouvons conclure que δ sera en général positif, mais peut être négatif au moins en principe, il suffit que $W_0 > 2\mu_0$.

b) Remarques. — Herzfeld [34] avait déjà montré que $\delta \sim \gamma\Phi_0$ en utilisant un raisonnement de thermodynamique et d'après l'ancienne théorie que $\Phi = W$.

Reimann [35] n'a considéré que la seule influence de μ dans $\Phi = W - \mu$, avec $W = C^{te}$, en partant de (23) il trouve un δ positif et du même ordre de grandeur que γ.

Wigner et Bardeen [36] ont calculé W et le travail d'extraction $\varnothing$ par les méthodes de la mécanique quantique. Ils trouvent que l'expression (8) n'est vraie qu'en première approximation, c'est-à-dire quand les électrons « libres » n'ont pas d'interaction les uns sur les autres et se trouvent dans un potentiel constant.

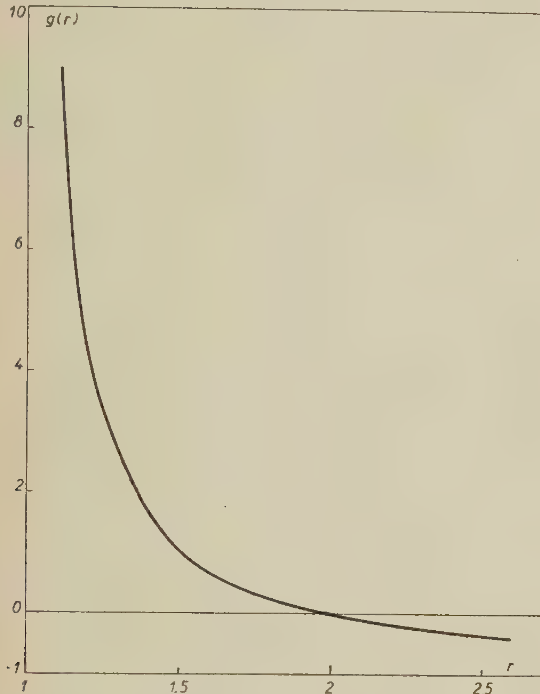


FIG. 10. — La fonction $g(r)$ qui détermine le coefficient de température du travail d'extraction en fonction du travail d'extraction à 0 °K et du coefficient de dilatation thermique (25).

Si l'on tient compte de ces interactions on doit ajouter à l'énergie des corrections pour l'énergie d'échange et l'énergie de corrélation par électron. On obtient

$$\Phi = (W - \mu) + \frac{0{,}61\ e^2}{r_1} + \frac{0{,}29\ e^2}{r_1 + 5{,}1\ a_H} + \frac{0{,}10\ e^2\ r_1}{(r_1 + 5{,}1\ a_H)^2}$$

où r_e est le rayon d'une sphère de volume égal au volume du métal par électron libre. a_H est le premier rayon de Bohr. Même dans cette nouvelle approximation le raisonnement qui a conduit à (25) reste valable puisque les termes supplémentaires peuvent être inclus dans $\mu \sim v^{-1/3}$.

Pour une théorie exacte de l'effet de température dans Φ, on devrait considérer un effet de volume accompagné d'autres effets :

$$\frac{\partial}{\partial T} = \left(\frac{\partial}{\partial T}\right)_V + \left(\frac{\partial}{\partial V}\right)_T \frac{\partial V}{\partial T}.$$

On peut montrer que l'effet de volume est prépondérant. Il a été calculé par Wigner et d'autres [37] en utilisant des méthodes légèrement différentes.

c) ORDRE DE GRANDEUR DE $\mathrm{d}\alpha/\mathrm{d}T$. — Nous pouvons conclure que la formule (25) sera une bonne approximation pour δ. Mais comme on peut écrire pour la dilatation linéaire

$$l = l_0\left(1 + \gamma T + \frac{\mathrm{d}\gamma}{\mathrm{d}T}T^2\right) \simeq l_0(1 + 10^{-5}\ T + 10^{-8}\ T^2) \tag{26}$$

et comme nous avons par (25)

$$\alpha k + \frac{\mathrm{d}\alpha}{\mathrm{d}T}kT \sim \gamma + \frac{\mathrm{d}\gamma}{\mathrm{d}T}T,$$

nous voyons, en comparant (26) et (22), que l'accord entre les ordres de grandeur est très satisfaisant. Ceci confirme la seconde hypothèse.

Remarquons que l'émission thermoionique n'a pas su mettre en évidence l'effet du troisième ordre (22) parce que les droites de Richardson sont tracées dans un intervalle de température trop réduit [3].

Nous remercions Mlle Bartholomé pour une partie des calculs numériques et surtout M. le Pr de Hemptinne, dont les discussions et l'attention constante nous ont beaucoup encouragés.

Manuscrit reçu le 20 janvier 1959.

BIBLIOGRAPHIE

[1] MEESSEN (A.), *J. Physique Rad.*, 1958, **19**, 437.
[2] HUGHES et DU BRIDGE, Photoelectric Phenomena, 1932.
[3] BECKER (J. A.), *Rev. Mod. Physics*, 1935, **7**, 95.
[4] HERRING et NICHOLS, *Rev. Mod. Physics*, 1949, **21**, 185.
[5] NORDHEIM, *Proc. Roy. Soc.*, London, A, 1928, **121**, 626.
[6] International Critical Tables VI.
[7] DE BOER (J. N.), Elektronenemission und Adsorptionserscheinungen, Leipzig, 1937.
[8] NOTTINGHAM (W. B.), *Phys. Rev.*, 1936, **49**, 78.
[9] NOTTINGHAM (W. B.), *Phys. Rev.*, 1936, **49**, 79, 646 A ; 1940, **58**, 927.
[10] DYKE (W.) et DOLAN (W.), *Adv. Electr.*, 1956, VIII, 89.
[11] DAVISON, *Phys. Rev.*, 1924, **23**, 299.
[12] LANGMUIR (D.), *Phys. Rev.*, 1936, **49**, 428.
[13] POTTER, *Phys. Rev.*, 1940, **58**, 623.
[14] TAMM (I.) et SCHUBIN (S.), *Z. Physik*, 1931, **68**, 97.
[15] FOWLER (R. H.), *Phys. Rev.*, 1931, **38**, 45.
[16] DU BRIDGE, New theories of the photoelectric effect, Paris, 1935.
[17] NOTTINGHAM, *Phys. Rev.*, 1936, **49**, 649 A.
[18] WENTZEL (G.) et SOMMERFELD, 60. Fest-Zeitschrift, Leipzig, 1928. HOUSTON (W. V.), *Phys. Rev.*, 1930, **36**, 482. FRÖHLICH (H.), *Ann. Physik*, 1930, **7**, 103. MITCHELL (K.), *Proc. Roy. Soc.*, London A, 1934,

146, 442 ; 1936, **153**, 513 ; *Proc. Camb. Phil. Soc.*, 1935, **31**, 416. Machinson (R. E.), *Phys. Rev.*, 1949, **75**, 1908. Buckingham (M. J.), *Phys. Rev.*, 1950, **80**, 704. Linford (L. B.), *Rev. Mod. Physics*, 1933, **5**, 34.
[19] Waterman (A. T.), *Phys. Rev.*, 1936, **49**, 410 A ; 1937, **51**, 378 A.
[20] Houston (W. V.), *Phys. Rev.*, 1937, **52**, 1047.
[21] Mann (M.) et Du Bridge (L.), *Phys. Rev.*, 1937, **51**, 120.
[22] Cashman (R. J.) et Bassoe (E.), *Phys. Rev.*, 1939, **55**, 63.
[23] Jaminson (N. C.) et Cashman (R. J.), *Phys. Rev.*, 1936, **50**, 624. Cashman (R. J.) et Jaminson (N. C.), *Phys. Rev.*, 1936, **49**, 195 A, 877 A.
[24] Cardwell (A. B.), *Phys. Rev.*, 1935, **47**, 628.
[25] Morris (L. W.), *Phys. Rev.*, 1931, **37**, 1263. Winch (R. P.), *Phys. Rev.*, 1931, **37**, 1269. Cardwell (A. B.), *Phys. Rev.*, 1931, **38**, 2041. Suhrmann (R.) et Theissing (H.), *Z. Physik*, 1932, **73**, 717. Du Bridge et Roehr, *Phys. Rev.*, 1932, **39**, 99.
[26] Cashman (R. J.), *Phys. Rev.*, 1937, **52**, 512.
[27] Hornbeck, *Phys. Rev.*, 1924, **24**, 631.
[28] Smith (R. E.) et Dubridge (L. A.), *Phys. Rev.*, 1934, **46**, 339 A.
[29] King (A.), *Phys. Rev.*, 1938, **53**, 570.
[30] Schottky, *Z. Physik*, 1923, **14**, 63.
[31] Rother (F.) et Bomke (H.), *Z. Physik*, 1933, **86**, 231 ; 1934, **87**, 806.
[32] Bomke (H.), *Z. Physik*, 1934, **90**, 542 ; 1934, **91**, 400.
[33] Rosenfeld (L.) et Witmer (E.), *Z. Physik*, 1928, **89**, 534.
[34] Herzfeld (K. F.), *Phys. Rev.*, 1930, **35**, 248.
[35] Reimann (A. L.), *Nature*, 1934, **133**, 833.
[36] Wigner (E.) et Bardeen (J.), *Phys. Rev.*, 1935, **48**, 84. Bardeen (J.), *Phys. Rev.*, 1936, **49**, 653. Wigner (E. P.), *Trans. Farad. Soc.*, 1938, **34**, 678.
[37] Blochinzew et Droblina, *Phys. Z. Sow. U.*, 1935, **7**, 484. Seely (S.), *Phys. Rev.*, 1941, **59**, 75.

REVUE DE LIVRES

Grivet (P.) et Blaquière (A.), **Le bruit de fond** (1 vol., cartonné toile demi-souple 16,7 × 24,7, 496 pages, Masson et Cie, Paris, 1958, 6 500 F).

D'une manière un peu humoristique, on peut définir la science comme la lutte contre le bruit. Il ne s'agit évidemment pas des bruits acoustiques mais du bruit de fond que a radio-électricité fut la première discipline à signaler. lest apparu par la suite que le bruit de fond était un phénomène fondamental lié à la structure discontinue de la matière et de l'énergie. De toutes parts le bruit de fond nous enveloppe comme une brume et semble constituer la limite ultime de nos connaissances. Pourtant, par une approche statistique, il est encore possible d'extraire des renseignements de ce brouillard. L'étude de ces méthodes est l'objet du beau livre des professeurs Grivet et Blaquière. C'est dire que pour tous ceux qui ont l'ambition d'augmenter la somme de leurs connaissances, une pleine compréhension des matières dont traite ce livre est indispensable.

Guidés sans doute par des considérations pédagogiques, les auteurs vont progressivement du plus simple au plus compliqué. On examine d'abord le bruit de fond dans les résistances, puis dans les amplificateurs linéaires. L'étude des tubes à vide et des transistors est particulièrement complète. On aborde ensuite les méthodes d'amplification non linéaire et les procédés de réduction de l'influence perturbatrice du bruit. Un chapitre particulièrement intéressant, est consacré au bruit dans les auto-oscillateurs. On culmine enfin avec l'exposé désormais classique de la théorie de l'information et de ses correspondances thermodynamiques. L'avantage de cette manière de faire est de maintenir constamment le lecteur en contact avec l'expérience. Les outils mathématiques nécessaires, réduits d'ailleurs au strict minimum, sont introduits en cours d'exposition. A aucun moment la réalité physique n'est perdue de vue. Cette manière de faire est suffisamment rare dans notre pays pour qu'on en fasse une mention spéciale. La manière inverse, qui part des principes posés dès le départ pour en déduire à grand renfort d'arguments mathématiques les conséquences qu'on compare ensuite aux données expérimentales, conduit certes à un procédé d'exposition plus clair. On peut toutefois penser que la science physique réside justement dans la recherche des principes qui est ainsi escamotée. Il convient donc de louer hautement les auteurs d'avoir renoncé à une élégance factice pour mieux s'approcher de la vérité scientifique.

En résumé, ce livre est une Somme. L'importance du sujet qu'il traite jointe aux qualités pédagogiques de la méthode d'exposition fait que cet ouvrage constitue un livre de base pour tous les chercheurs.

M. Pauthier.

Sachse (H.), **Les ferroélectriques**, traduit de l'allemand par Bonnet (A.), 1 vol. broché 16 × 25 cm, 196 pages, 129 figures, Dunod, Paris, 1958, 2 650 F.

Pendant longtemps les propriétés anormales du sel de Seignette n'ont été considérées que comme une curiosité scientifique. La découverte récente dans les trente dernières années de corps possédant également un pouvoir inducteur spécifique élevé dont la valeur est très sensible à la température a été à l'origine d'un considérable renouveau d'intérêt pour cette branche de la science. On a forgé à cette occasion le mot de ferroélectricité à cause de l'analogie que présentent les phénomènes observés avec ceux du ferromagnétisme.

Il n'existe pas d'ouvrage en langue française donnant un traitement d'ensemble. C'est pourquoi la traduction et l'édition de ce livre en France correspondent effectivement à un véritable besoin. Il ne s'agit toutefois pas d'un traité théorique et définitif. L'auteur a plutôt voulu faire une mise à jour des travaux publiés sur ces problèmes. On a donc affaire à une sorte de compilation donnant les résumés et les références bibliographiques sans beaucoup de commentaires de la part de l'auteur. Le chercheur déjà évolué appréciera sans doute ce parti-pris de présentation impartiale mais l'on doit signaler que le lecteur qui aborde pour la première fois ces problèmes risque de se trouver déconcerté par cette succession d'exposés de résultats souvent contradictoires. Ce n'est évidemment pas l'auteur qui est responsable de cet état de fait, mais bien plutôt la complexité des matières traitées.

La bibliographie paraît assez complète. Les derniers ouvrages cités datent de 1956. On regrettera cependant l'absence quasi totale de citations d'origine française.

M. Pauthier.

ÉTUDE DU REFROIDISSEMENT D'UN GAZ DE PARTICULES CHARGÉES DANS UN PLASMA TOTALEMENT IONISÉ

Par A. BRIN,
Commissariat à l'Énergie Atomique.

J.-L. DELCROIX,
École Normale Supérieure.

J. SALMON,
Commissariat à l'Énergie Atomique.

Résumé. — L'étude du refroidissement d'un gaz de particules chargées au sein d'un plasma totalement ionisé est entreprise dans le cadre des hypothèses de Rosenbluth, MacDonald et Judd en supposant en outre la concentration du gaz faible vis-à-vis de celle des particules du plasma.

Dans ces conditions le phénomène est régi par une certaine équation aux dérivées partielles. Cette équation est linéaire ; on peut appliquer la méthode des fonctions propres et valeurs propres et définir ainsi des temps de relaxation.

Dans un cas particulier important on peut expliciter les écarts caractéristiques et les temps de relaxation de ces écarts. On compare avec les résultats de Spitzer.

Abstract. — The cooling of a gas of charged particles in a fully ionized plasma is studied following the assumptions of Rosenbluth, MacDonald and Judd. The gas concentration is assumed low compared with the concentration of plasma particles.

In these cases, the process obeys a partial derivate equation. This equation is linear ; then, the method of eigen functions and eigen values is suitable, and it is possible to define relaxation times.

In a particularly important case, the characteristic deviations and relaxation times can be obtained in detail. A comparaison is made with the results of Spitzer.

1° Introduction. — Nous nous proposons d'étudier l'évolution de la fonction de distribution d'un groupe de particules P chargées au sein d'un plasma totalement ionisé, à partir d'une fonction de distribution initiale isotrope mais différente à priori de la forme maxwellienne, la concentration de ces particules dites particules test étant très faible devant les concentrations des particules positives et négatives du plasma.

Celui-ci est constitué en premier lieu par des électrons e de masse m_e et de charge — e, leur densité est n_e et leur fonction de distribution $f_e(w_e)$.

D'autre part, les ions positifs i ont une masse m_i et une charge Z_i leur densité est n_i et leur fonction de distribution $f_i(w_i)$.

Le plasma est en équilibre dans un thermostat à la température T_0 les fonctions $f_e(w_e)$ et $f_i(w_i)$ sont donc indépendantes du temps et possèdent la forme Maxwellienne.

$$f_e = n_e \left[\frac{m_e}{2\pi kT_0}\right]^{3/2} e^{-\frac{m_e w_e^2}{2kT_0}} \quad (1)$$

$$f_i = n_i \left[\frac{m_i}{2\pi kT_0}\right]^{3/2} e^{-\frac{m_i w_i^2}{2kT_0}} \quad (2)$$

k, constante de Boltzmann.

Le plasma est quasi-neutre, ce qui implique la condition

$$n_e = Z_i\, n_i. \quad (3)$$

Les particules étudiés ont pour masse m et pour charge Z ; leur densité est n et leur fonction de distribution $f(w, t)$, caractérisé à l'instant initial par une certaine forme $f_{in}(w)$, f évolue avec le temps vers la forme Maxwellienne f_0.

$$f_0 = n \left[\frac{m}{2\pi kT_0}\right]^{3/2} e^{-\frac{mw^2}{2kT}}. \quad (4)$$

La densité n est supposée très faible devant n_e et n_i. La condition de neutralité n'est donc pas affectée par la présence des particules P et de plus les interactions des particules P entre elles jouent un rôle négligeable devant celui des interactions des particules P avec les particules e et i. L'évolution de f est donc commandée par ces dernières. Les potentiels qui régissent ces interactions sont du type Coulombien avec effet d'écran, soit

$$-\frac{Ze^2}{r} e^{-r/h} \quad \text{et} \quad \frac{ZZ_i\, e^2}{r} e^{-r/h}$$

h désignant la longueur de Debye du plasma (voir

appendice I). Les expressions des sections efficaces sont donc dans le référentiel du centre de masse.

INTERACTION P — e

$$\sigma_e = \frac{Z^2 e^4}{4\mu_e^2 u_e^2 \sin^4(\theta_e/2)}. \quad (5)$$

INTERACTION P — i

$$\sigma_i = \frac{Z^2 Z_i^2 e^4}{4\mu_i^2 u_i^2 \sin^4(\theta_i/2)}. \quad (6)$$

μ_e et μ_i désignent les masses réduites respectives, u_i et u_e les modules des vecteurs vitesse relative $\boldsymbol{w} - \boldsymbol{w}_e$ et $\boldsymbol{w} - \boldsymbol{w}_i$, θ_e et θ_i les angles de déviation.

L'effet d'écran limite la validité des formules (5) et (6) aux domaines $\theta_{em} - \pi$ et $\theta_{im} - \pi$, les sections efficaces étant nulles en dehors de ces intervalles ; θ_{em} et θ_{im} sont donnés par les formules

$$\theta_{em} = \frac{2Ze^2}{\mu_e u_e^2 h} \quad (7) \qquad \theta_{im} = \frac{2ZZ_i e^2}{\mu_i u_i^2 h}. \quad (8)$$

2° **Opérateur de collision.** — L'équation d'évolution s'écrit :

$$\frac{\partial b}{\partial t} = \left[\left(\frac{\partial}{\partial t}\right)_{\text{collision P — e}} + \left(\frac{\partial}{\partial t}\right)_{\text{collision P — i}}\right] f. \quad (9)$$

Dans cette équation figurent au second membre, les opérateurs de collision P — e et P — i. Les expressions choisies pour ceux-ci sont celles de Fokker-Planck à savoir :

$$\left(\frac{\partial f}{\partial t}\right)_{\text{collision P — e}} = -\sum \frac{\partial}{\partial w_x}[f < \Delta w_x > e]$$
$$+ \frac{1}{2} \sum \frac{\partial}{\partial w_x \partial w_y}[f < \Delta w_x \Delta w_y > e]. \quad (10)$$

Cette équation suppose que les interactions lointaines ($\theta \ll \pi$) sont prépondérantes ; w_x, w_y et w_z, y désignent les composantes Cartésiennes de $\boldsymbol{w}$, $< \Delta w_x >_e$, la valeur moyenne de la variation par unité de temps de la composante w_x sous l'effet des collisions avec les électrons et $< \Delta w_x \Delta w_y >_e$ la valeur moyenne par unité de temps du produit des variations des composantes w_x et w_y. Les sommations sont faites par rapport aux trois composantes et l'expression $\left[\left(\frac{\partial f}{\partial t}\right)_{\text{collision P — i}}\right]$ est analogue à celle de $\left[\left(\frac{\partial f}{\partial t}\right)_{\text{collision P — e}}\right]$.

Le calcul de $\left[\left(\frac{\partial f}{\partial t}\right)_{\text{collision P — e}}\right]$ et de $\left[t\left(\frac{\partial f}{\partial t}\right)_{\text{collision P — i}}\right]$ sera fait en utilisant la méthode et les approximations de Rosenbluth, MacDonald et Judd [2].

Il vient ainsi :

$$\Gamma_e^{-1}\left(\frac{\partial f}{\partial t}\right)_{\text{collision P — e}} = -\frac{1}{w^2}\frac{d}{dw}\left[f w^2 \frac{dh_e}{dw}\right]$$
$$+ \frac{1}{2w^2}\frac{d^2}{dw^2}\left[f w^2 \frac{dg_e}{dw}\right] - \frac{1}{w^2}\frac{d}{dw}\left[f \frac{dg_e}{dw}\right]. \quad (11)$$

Dans cette formule Γ_e est donné par l'expression :

$$\Gamma_e = \frac{4\pi Z^2 e^4}{m^2} \operatorname{Log} \frac{3kT_0 h}{Ze^2} \quad (12)$$

tandis que les fonctions h_e et g_e s'écrivent :

$$h_e(w) = \frac{m + m_e}{m_e} \iiint |\mathbf{w} - \mathbf{w}_e|^{-1} f(\mathbf{w}_e) \, d\mathbf{w}_e$$
$$= \frac{m + m_e}{m_e} n_e \left[\frac{m_e}{2\pi kT_0}\right]^{3/2} \int_0^\infty \int_{-1}^{+1} \frac{2\pi e^{-\frac{m_e w_e^2}{2kT_0}} w_e^2 \, dw_e \, d\mu}{\sqrt{w^2 + w_e^2 - 2ww_e\mu}} \quad (13)$$

$$g_e(w) = \iiint |\mathbf{w} - \mathbf{w}_e| \, f(\mathbf{w}_e) \, d\mathbf{w}_e = n_e \left[\frac{m_e}{2\pi kT_0}\right]^{3/2}$$
$$\int_0^\infty \int_{-1}^{+1} 2\pi e^{-\frac{m_e w_e^2}{2kT_0}} \sqrt{w^2 + w_e^2 - 2ww_e\mu} \, w_e^2 \, dw_e \, d\mu. \quad (14)$$

Calculons (13) et (14) en fractionnant l'intervalle $0 - \infty$ en deux intervalles $0 - w$ et $w - \infty$ à l'intérieur desquels on prendra le signe convenable pour $(w - w_e)$; posons d'autre part

$$w_{e0}^2 = \frac{2kT_0}{m_e} \quad w_{i0}^2 = \frac{2kT_0}{m_i} \quad w_0^2 = \frac{2kT_0}{m} \quad (15)$$

et introduisons la fonction erreur et sa dérivée :

$$\varphi(X) = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \int_0^X e^{-\beta^2} \, d\beta \quad (16) \qquad \varphi'(X) = \frac{2}{\sqrt{\pi}} e^{-X^2}. \quad (17)$$

Il vient ainsi :

$$h_e(w) = n_e \frac{m + m_e}{m_e} \frac{1}{w_{e0}^3} \frac{\varphi(w/w_{e0})}{(w/w_{e0})} \quad (18)$$

$$g_e(w) = n_e w_{e0} \left[\frac{[1 + 2(w^2/w_{e0}^2)] \, \varphi(w/w_{e0}) + (w/w_{e0}) \, \varphi'(w/w_{e0})}{2w/w_{e0}}\right]. \quad (19)$$

Reportant (18) et (19) dans (11) il vient tous calculs faits.

$$\left(\frac{\partial f}{\partial t}\right)_{\text{collision P — e}} = \frac{\Gamma_e n_e}{w_{e0}^3}$$
$$\left\{ \frac{\varphi(w/w_{e0}) - (w/w_{e0}) \, \varphi'(w/w_{e0})}{2(w/w_{e0})^3} w_{e0}^2 \frac{\partial^2 f}{\partial w^2} \right.$$
$$+ \left[\left(\frac{\varphi(w/w_{e0}) - (w/w_{e0}) \, \varphi'(w/w_{e0})}{(w/w_{e0})^2}\right)\left(1 + \frac{m}{m_e} - \frac{1}{2(w/w_{e0})^2}\right)\right.$$
$$\left. + \frac{2 \, \varphi'(w/w_{e0})}{(w/w_{e0})} - \frac{\varphi(w/w_{e0})}{(w/w_{e0})^2}\right] w_{e0} \frac{\partial f}{\partial w}$$
$$\left. + 2 \frac{m}{m_e} \varphi'\left(\frac{w}{w_{e0}}\right) f \right\}. \quad (20)$$

Le calcul de $\left(\frac{\partial f}{\partial t}\right)_{\text{collision P — i}}$ est identique et joint à celui de $\left(\frac{\partial f}{\partial t}\right)_{\text{collision P — e,}}$ permet d'expliciter complètement (9), introduisons alors la variable réduite

$$x = w/w_0 \tag{21}$$

et les paramètres

$$s_e = [m_e/m]^{1/2} \quad s_i = [m_i/m]^{1/2} \tag{21 bis}$$

$$b_e = n_e\,\Gamma_e/w_0^3 \quad b_i = n_i\,\Gamma_i/w_0^3.$$

Les rapports w/w_{e0} et w/w_{i0} qui figurent dans les opérateurs de collisions s'écrivent :

$$w/w_{e0} = xs_e, \qquad w/w_{i0} = xs_i. \tag{22}$$

L'équation (9) s'écrit maintenant :

$$\frac{\partial f}{\partial t} = \frac{\partial^2 f}{\partial x^2}\left\{\frac{b_e}{2s_e^2}\left[\frac{\varphi(xs_e) - xs_e\,\varphi'(xs_e)}{x^3}\right] + \frac{b_i}{2s_i^2}\left[\frac{\varphi(xs_i) - xs_i\,\varphi'(xs_i)}{x^3}\right]\right\}$$
$$+ \frac{\partial f}{\partial x}\left\{b_e\left[\left(\frac{\varphi(xs_e) - xs_e\,\varphi'(xs_e)}{x^2}\right)\left(1 + \frac{1}{s^2} - \frac{1}{2x^2 s_e^2}\right) + 2\frac{s_e}{x}\varphi'(xs_e) - \frac{\varphi(xs_e)}{x^2}\right]\right.$$
$$+ b_i\left[\left(\frac{\varphi(xs_i) - xs_i\,\varphi'(xs_i)}{x^2}\right)\left(1 + \frac{1}{s_i^2} - \frac{1}{2x^2 s_i^2}\right)\right.$$
$$\left.\left. + \frac{2s_i}{x}\varphi'(xs_i) - \frac{\varphi(xs_i)}{x^2}\right]\right\} + 2f\left\{b_e\,s_e\,\varphi'(xs_e) + b_i\,s_i\,\varphi'(xs_i)\right\}. \tag{23}$$

Faisons enfin dans (23) le changement de fonction

$$f(x, t) = u(x, t)\,e^{-x^2} \tag{24}$$

$$\left[e^{-x^2} = e^{-\frac{w^2}{w_0^2}} = e^{-\frac{mw^2}{2kT_0}}\right]. \tag{24 bis}$$

Il vient :

$$\frac{\partial u}{\partial t} = \frac{\partial^2 u}{\partial x^2}\left\{\frac{b_e}{2s_e^2}\left[\frac{\varphi(xs_e) - xs_e\,\varphi(xs_e)}{x^3}\right] + \frac{b_i}{2s_i^2}\left[\frac{\varphi(xs_i) - xs_i\,\varphi'(xs_i)}{x^3}\right]\right\}$$
$$+ \frac{\partial u}{\partial x}\left\{b_e\left[\frac{s_e}{x}\varphi'(xs_e) - \frac{(\varphi(xs_e) - xs_e\,\varphi'(xs_e))}{x^2 s_e^2}\left(1 + \frac{1}{2x^2}\right)\right]\right.$$
$$\left. + b_i\left[\frac{s_i}{x}\varphi'(xs_i) - \frac{(\varphi(xs_i) - xs_i\,\varphi'(xs_i))}{x^2 s_i^2}\left(1 + \frac{1}{2x^2}\right)\right]\right\}. \tag{25}$$

On remarque immédiatement la solution

$$u(x, t) = C^{te} \tag{26}$$

laquelle correspond à la forme Maxwellienne

$$f = f_0 = n\left[\frac{m}{2\pi\,kT_0}\right]^{3/2} e^{-\frac{mw^2}{2kT_0}}. \tag{27}$$

La fonction de distribution des particules au fur et à mesure de leur refroidissement tend vers la forme (27). Le formalisme et les approximations faites lors de l'établissement de l'équation de Fokker-Planck conduisent donc à un résultat cohérent à savoir la possibilité du retour à l'équilibre. Il est à remarquer que le développement taylorien utilisé dans l'établissement de l'équation de Fokker-Planck est du deuxième ordre et que le premier ordre seul n'assurerait pas l'existence d'une solution stationnaire. Il en va de même en théorie cinétique des plasmas faiblement ionisés ; l'action de l'opérateur de collision sur une fonction isotrope des vitesses conduit à la formule de Chapman et Cowling dont l'établissement réclame également un développement taylorien jusqu'au second ordre et assure en conséquence la possibilité du retour à l'équilibre par l'existence d'une solution maxwellienne.

On peut en conclure que dans les deux cas le développement jusqu'au premier ordre ne traduit que la conservation de la quantité de mouvement et qu'il faut aller jusqu'au second ordre pour exprimer la conservation de l'énergie.

3° **Étude générale de l'équation (25).** — Le problème de l'évolution de la fonction de distribution est donc celui de la résolution de l'équation (25), avec les conditions aux limites.

$$t = 0, \qquad u = u_{in} = f_{in}(x)\,e^{x^2} \tag{27}$$

$$t \to \infty \qquad u \to n\left[\frac{m}{2\pi\,kT_0}\right]^{3/2}. \tag{28}$$

On peut transformer l'équation (25) en une équation aux différences finies, bien adaptée à l'utilisation d'un calculateur électronique.

On peut également considérer le second membre de (25) comme l'action d'un opérateur linéaire sur la fonction u et chercher les valeurs propres et fonctions propres de cet opérateur, ce qui facilite la recherche et l'interprétation de la solution. Nous verrons un exemple de cette méthode au paragraphe suivant.

3° **Cas particulier important.** — Nous allons étudier l'équation (25) dans le cas où les quantités xs_e et xs_i c'est-à-dire w/w_{e0} et w/w_{i0} sont faibles devant l'unité pour la plus grande partie des particules P. Il est facile de vérifier que ceci est équivalent à la condition plus physique.

$$1 < T_{in}/T_0 \ll m/m_i \ll m/m_e \tag{29}$$

en appelant T_{in} la température cinétique initiale des particules P, les inégalités s'appliqueront éven-

tuellement au problème du refroidissement d'un gaz de particules lourdes dans un gaz léger.

Faisons x petit dans l'équation (25) en utilisant les développements limites

$$\varphi(X) = \frac{2}{\sqrt{\pi}}\left(X - \frac{X^3}{3}\right) \qquad \varphi'(X) = \frac{2}{\sqrt{\pi}}(1 - X^2).$$

Posant

$$\frac{1}{3\sqrt{\pi}}(b_e s_e + b_i s_i)\, t = \tau \tag{30}$$

et tenant compte de l'inégalité

$$s_e^2 \gg s_i^2 \gg 1 \tag{31}$$

nous obtenons l'équation très simple

$$\frac{\partial u}{\partial \tau} = \frac{\partial^2 u}{\partial x^2} + \frac{2}{x}(1 - x^2)\frac{\partial u}{\partial x}. \tag{32}$$

Dans ce cas il est possible de trouver une expression analytique des fonctions propres de l'opérateur du second membre.

En effet une étude détaillée de l'équation

$$\frac{d^2 u}{dx^2} + \frac{2}{x}(1 - x^2)\frac{du}{dx} = \lambda u \tag{33}$$

montre qu'on doit imposer aux solutions u les conditions aux limites

$$x \to 0 \qquad \frac{du}{dx} = 0 \tag{34}$$

$$x \to \infty \qquad u \sim x^{2n} \text{ (n entier positif)} \tag{35}$$

et que les fonctions u_n ainsi que les valeurs λ_n de λ données par les expressions

$$u_n = \frac{H_{2n+1}(x)}{x} \tag{35}$$

$$\lambda_n = -4n \text{ (n entier positif ou nul)} \tag{36}$$

formant un ensemble de fonctions propres et de valeurs propres satisfaisant à la fois à l'équation (33) et aux conditions (34) et (35); $H_{2n+1}(x)$ désigne le polynôme d'Hermite de degré $2n + 1$. Exprimons alors la solution de (32) sous la forme :

$$u(x, \tau) = \sum_0^\infty a_n(\tau)\, u_n(x) \tag{37}$$

et reportons dans (32) il vient

$$\sum_0^\infty \frac{da_n}{d\tau}\frac{H_{2n+1}(x)}{x} = -\sum_0^\infty 4na_n(\tau)\frac{H_{2n+1}(x)}{x}.$$

Multiplions les deux membres par $x\, e^{-x^2} H_{2p+1}(x)$ et intégrons de zéro à l'infini en utilisant les relations d'orthogonalité des polynômes de Hermite.

$$\int_0^\infty H_{2p+1}(x) \quad H_{2n+1}(x) \quad e^{-x^2} \quad dx = 0 \quad p \neq n$$

$$= 2^{2p} \quad 2p + 1! \quad \sqrt{\pi} \quad p = n.$$

Il vient :

$$\frac{da_n}{d\tau} = -4na_n$$

d'où

$$a_n = A_n\, e^{-4n\tau} \tag{38}$$

ce qui donne pour $u(x, \tau)$

$$u(x, \tau) = \sum_0^\infty A_n\, e^{-4n\tau}\frac{H_{2n+1}(x)}{x}. \tag{39}$$

Les constantes A_n peuvent être obtenues à partir de la fonction de distribution initiale $f_{in}(x)$ posons

$$u_{in}(x) = f_{in}(x)\, e^{x^2} \tag{40}$$

et faisons τ égal à zéro dans (39) il vient

$$u_{in}(x) = \sum A_n \frac{H_{2n+1}(x)}{x}. \tag{41}$$

Multiplions encore par $x\, e^{-x^2} H_{2p+1}(x)$ et intégrons en faisant varier p de zéro à l'infini, il vient :

$$A_n = \frac{\int_0^\infty x u_{in}(x)\, e^{-x^2} H_{2n+1}(x)\, dx}{2^{-2n}\, 2n + 1!\, \sqrt{\pi}} \tag{42}$$

d'où l'expression finale de la fonction de distribution

$$f(x, t) = e^{-x^2}\left[\sum_0^\infty \left[\frac{\int_0^\infty x f_{in}(x)\, H_{2n+1}(x)\, dx}{2^{2n}\, 2n + 1!\, \sqrt{\pi}}\right] \frac{H_{2n+1}(x)}{x}\, e^{-\frac{8n}{3\sqrt{\pi}}(b_e s_e + b_i s_i)t}\right] \tag{43}$$

avec

$$x = w\left[\frac{m}{2kT_0}\right]^{3/2} \tag{44}$$

$$b_e s_e + b_i s_i = \left[\frac{m}{2kT_0}\right]^{3/2} \left[n_e \Gamma_e \left(\frac{m_e}{m}\right)^{1/2} + n_i \Gamma_i \left(\frac{m_i}{m}\right)^{1/2}\right] \tag{45}$$

$$\Gamma_e = \frac{4\pi Z^2 e^4}{m^2} \operatorname{Log} \frac{3kT_0 h}{Ze^2} \tag{46}$$

$$\Gamma_i = \frac{4\pi Z_i^2 Z^2 e^4}{m^2} \operatorname{Log} \frac{3kT_0 h}{ZZ_i e^2}. \tag{47}$$

Connaissant les masses, charges et densités m, m_e, m_i, Z, Z_i, n, n_i, n_e en jeu ainsi que la température du plasma T_0 et sa longueur de Debye h on déduit explicitement la forme de la fonction $f(w, t)$ en fonction de la distribution initiale $f_{in}(w)$, $f(w, t)$ apparaît comme une somme d'exponentielles de constantes de temps

$$t_0,\ t_0/2\ \ldots\ t_0/n \text{ avec } t_0 = \frac{3\sqrt{\pi}}{8}\frac{1}{b_e s_e + b_i s_i}. \tag{48}$$

Explicitons t_0.
D'une part :

$$b_e s_e + b_i s_i = \frac{4\pi Z^2 e^4}{m^2} \left[\frac{m}{2kT_0}\right]^{3/2}$$

$$\left[n_e \left(\frac{m_e}{m}\right)^{3/2} \log \frac{3kT_0 h}{Ze^2} + n_i Z_i^2 \left(\frac{m_i}{m}\right)^{1/2} \log \frac{3kT_0 h}{ZZ_i e^2}\right] \quad (49)$$

d'autre part :

$$n_e = n_i Z_i. \quad (3)$$

On peut donc écrire :

$$b_e s_e + b_i s_i = \frac{4\pi Z^2 Z_i e^4}{m^2} n_i \left(\frac{m}{2kT_0}\right)^{3/2}$$

$$\left[\left(\frac{m_e}{m}\right)^{1/2} \log \frac{3kT_0 h}{Ze^2} + Z_i \left(\frac{m_i}{m}\right)^{1/2} \log \frac{3kT_0 h}{ZZ_i e^2}\right]. \quad (50)$$

Les termes en logarithmes influent peu sur la valeur de chacun des termes du crochet tandis que $m_i Z_i^2$ est toujours très supérieur à m_e. Il vient donc pour t_0 l'expression approchée.

$$t_0 = \frac{3mm_i k^{3/2}}{8(2\pi)^{1/2} Z^2 Z_i^2 e^4 n_i \log \frac{3kT_0 h}{ZZ_i e^2}} \left(\frac{T_0}{m_i}\right)^{3/2}. \quad (51)$$

Or Spitzer [3] donne pour le temps de relaxation entre deux distributions Maxwelliennes initialement à des températures différentes T_{in} et T_0 et avec retour à T_0 l'expression

$$t_{eq} = \frac{3mm_i k^{3/2}}{8(2\pi)^{1/2} Z^2 Z_i^2 e^4 n_i \log \Lambda} \left(\frac{T_0}{m_i} + \frac{T_{in}}{m}\right)^{3/2} \quad (52)$$

avec

$$\Lambda = \frac{3}{2\, Ze^3} \left(\frac{k^3 T^3}{\pi n_e}\right)^{1/2}.$$

Comme nous avons supposé $\frac{T_{in}}{T_0} \ll \frac{m}{m_i}$ et comme $\log \Lambda$ influe peu sur le dénominateur on voit que notre temps t_0 se confond pratiquement avec le temps d'équipartition de Spitzer. Remarquons d'autre part qu'on peut résumer nos résultats en disant que t_0 est une limite supérieure des temps de relaxation qui interviennent. C'est la constante de temps principale ; notre méthode permet de définir des écarts non Maxwelliens caractéristiques et t_0 est le temps de relaxation des écarts du premier ordre.

Appendice I. — Il y a une certaine difficulté à définir de façon non ambiguë la longueur de Debye dans un plasma, du moins quand on utilise cette notion pour introduire une coupure raisonnable dans l'étude des problèmes dynamiques et en particulier dans les intégrales de collision [4]. On trouve dans la littérature les deux formules contradictoires.

$$h^2 = \frac{KT}{4\pi n_e e^2} \quad (1)$$

et

$$h^2 = \frac{kT}{4\pi[n_e e^2 + n_i Z_i^2 e^2]}. \quad (2)$$

On obtient en fait la formule (2) quand on calcule correctement par la méthode des fonctions de distribution multiples de J. Yvon les corrélations entre électrons et ions dans un plasma en équilibre thermodynamique. L'effet d'écran qu'on trouve alors comporte de façon tout à fait symétrique une contribution due aux électrons et une contribution due aux ions. C'est cette formule que l'on doit utiliser pour calculer les propriétés statistiques d'un plasma en équilibre par exemple l'énergie moyenne d'interaction entre les particules.

Quand on étudie les collisions on utilise au contraire la formule (1) ; on néglige l'effet d'écran dû aux ions ; cela revient à admettre que les collisions sont des phénomènes trop rapides pour que cet effet ait le temps de se produire. Il est facile de vérifier par un raisonnement élémentaire que ceci est justifié pour les collisions e — P. On peut en effet définir un « temps efficace » de collision par la formule

$$t = p / w_e \quad (3)$$

dans laquelle p désigne le paramètre d'impact et w_e la vitesse de l'électron. Cette quantité est de l'ordre de grandeur du temps que passent les deux particules considérées à une distance de l'ordre de p. Pour les collisions les plus lointaines la valeur moyenne de ce temps est $\bar{t}$ avec

$$t = \frac{h}{w} = \left[\frac{KT}{4\pi n_e e^2}\right]^{1/2} \left[\frac{m}{3KT}\right]^{1/2} \sim \frac{1}{\omega_e} \sim \left(\frac{m_e}{m_i}\right)^{1/2} \frac{1}{\omega_i}$$

en appelant ω_e et ω_i les fréquences de plasma électronique et ionique, $\bar{t}$ étant bien plus petit que ω_i, il est donc raisonnable d'utiliser l'expression (1) pour le problème qui nous intéresse.

Appendice II. — Étudions l'équation

$$\frac{d^2 u}{dx^2} + \frac{2}{x}(1 - x^2)\frac{du}{dx} = \lambda u$$

et montrons que les solutions de cette équation n'ont de sens physique que si l'on a

$$\lambda = \lambda_n = -4n.$$

Rappelons tout d'abord que

$$f(x) = u\, e^{-x^2}$$

et que la fonction f doit être bornée partout et tendre vers zéro lorsque x tend vers l'infini.

Le changement de fonction

$$y = ux \quad f(x) = \frac{y}{x} e^{-x^2}$$

conduit à l'équation d'Hermite

$$y'' - 2xy' + 2\alpha y = 0$$

avec

$$\alpha = 1 - \frac{\lambda}{2}.$$

La solution générale de cette équation est

$$y = Ay_1 + By_2$$

avec

$$y_1 = \sum_0^\infty (-2)^r \frac{\alpha(\alpha - 2) \text{———} (\alpha - 2r + 2)}{2r\,!}\, x^{2r}$$

et

$$y_2 = x \sum_0^\infty (-2)^j \frac{(\alpha - 1)(\alpha - 3) \text{———} (\alpha - 2r + 1)}{2r + 1\,!}\, x^r.$$

y_1 et y_2 se réduisent aux polynômes d'Hermite $H_{2r}(x)$ et $H_{2r+1}(x)$ lorsque α est un entier.

Comme $y_1/x\, e^{-x^2}$ tend vers l'infini à l'origine on doit faire $A = 0$.

Il reste : $y = By_2$.

On peut montrer que le produit de la série infinie y_2/x par e^{-x^2} ne tend pas vers zéro lorsque x tend vers l'infini.

Il est donc nécessaire que y_2/x se réduise à un polynôme d'où

$$\alpha = \alpha_n = 2n + 1 \quad \lambda_n = -4n$$

$$y_{2n} = H_{2n+1}(x) \qquad u_n = \frac{H_{2n+1}(x)}{x}.$$

Manuscrit reçu le 2 décembre 1958.

BIBLIOGRAPHIE

[1] Chandrasekhar, *Rev. Mod. Physics*, 15, **1**, 43.
[2] Rosenbluth, MacDonald et Judd, *Phys. Rev.*, 1957, **107**, 1.
[3] Spitzer, Physics of fully ionized gases (Interscience Publishers, 1956).
[4] J. L. Delcroix, Introduction à la théorie des gaz ionisés (Dunod, Paris, 1959).

FACTEURS DE RÉFLEXION, DE TRANSMISSION ET COEFFICIENTS D'ABSORPTION DE COUCHES MINCES D'OR POUR DES RADIATIONS DE LONGUEURS D'ONDE COMPRISES ENTRE 2 536 Å ET 6 438 Å

Par Roger PHILIP,
Laboratoire de Physique générale, Faculté des Sciences de Marseille.

Résumé. — On mesure les facteurs de transmission, et de réflexion de couches minces d'or d'épaisseurs comprises entre 0 et 95 mμ ; on en déduit les coefficients d'absorption correspondants. Cette étude est faite pour 12 radiations de longueurs d'onde comprises entre 2 536 et 6 438 Å. On étudie la variation de ces divers facteurs en fonction de l'épaisseur des couches, puis, pour une couche d'épaisseur connue, en fonction de la longueur d'onde de la radiation utilisée.

Abstract. — Coefficients of transmission and reflexion of thin gold layers, of thickness between 0 and 95 mμ, are measured, and corresponding absorption coefficients are deduced. The measurements are made for 12 radiations of wavelengths between 2 536 and 6 438 Å. The variations of these coefficients as a function of the thickness of the layers, and, for a given thickness, as a function of the wavelength are investigated.

I. **Introduction.** — De nombreuses études ont déjà été faites en vue de la détermination des constantes optiques de couches minces d'or.

Pourtant, comme l'ont fait remarquer Malé [1] et Schopper [2], la plupart de ces études sont à reprendre. Ces auteurs eux-mêmes n'ont déterminé les constantes optiques de l'or que pour un nombre assez restreint de radiations appartenant surtout au spectre visible. Nous nous proposons donc dans le présent travail d'étudier systématiquement les facteurs de réflexion, de transmission et les coefficients d'absorption de couches minces d'or. Dans un prochain article nous compléterons ces mesures par celles des variations de phase d'une onde lumineuse lorsqu'elle se réfléchit dans l'air sur le métal ou dans le quartz sur le métal et nous en déduirons les constantes optiques de ces couches d'or.

II. **Préparation des couches. Principe des mesures.** — Cette étude a été faite pour 12 radiations de longueurs d'onde comprises entre 2 536 Å et 6 438 Å. Chacune des mesures a été faite pour 18 couches minces d'or dont les épaisseurs déduites d'une pesée, étaient comprises entre 0,6 mμ et 95 mμ. Ces couches métalliques ont été obtenues par évaporation thermique ; l'or était chauffé dans un creuset en molybdène sous un vide de l'ordre de 10^{-5} mm de Hg. L'évaporateur utilisé a déjà été décrit [1] ; rappelons qu'on condense l'or simultanément sur 3 lames placées très près l'une de l'autre : une lame d'étalon de Perot-Fabry en quartz, une lamelle à faces planes et parallèles en quartz et une lamelle couvre-objet de microscope. Toutes les mesures des facteurs de transmission T, de réflexion côté air R et côté support R', ainsi que celles de la variation de phase φ_r d'une onde lumineuse lorsqu'elle se réfléchit dans l'air sur le métal, sont effectuées sur la lame d'étalon de Perot-Fabry. La lame à faces planes et parallèles sert à la mesure des variations de phase d'une onde lumineuse lorsqu'elle se réfléchit dans le quartz sur le métal $\varphi_{r'}$, La lamelle couvre-objet de microscope sert, par pesée avant et après l'évaporation, à déterminer « l'épaisseur massique » de la lame étudiée, c'est-à-dire celle obtenue en supposant la densité de l'or en couche mince égale à celle de l'or massif soit 19,3. On sait que cette épaisseur est inexacte et ne peut constituer qu'un moyen de repérage,

Un disque, genre disque de Talbot, se déplace devant les 2 lames en quartz et permet d'obtenir simultanément sur celles-ci 9 couches d'or dont les épaisseurs croissent en progression arithmétique. Deux évaporations seulement ont donc été nécessaires pour notre travail. Elles ont été conduites à une vitesse moyenne d'évaporation de 3 mμ à la minute.

Le principe des mesures photométriques a été rappelé par D. Malé [1]. On compare les facteurs de réflexion et de transmission de la couche d'or à ceux du support nu, ces derniers étant faciles à calculer au moyen des formules de Fresnel.

L'appareillage utilisé a été décrit par J. Trompette [3] le récepteur est une cellule à multiplicateurs d'électrons.

III. **Résultats.** — Les tableaux et courbes ci-après résument les résultats obtenus.

A) Variation des facteurs de transmission, de réflexion et des coefficients d'absorption en fonction de l'épaisseur de la couche métallique (*fig.* 1, 2, 3, 4). — On remarque que les courbes, représentant la variation du facteur de transmission T en fonction de l'épaisseur de la

6 438 Å

e_m en mμ	T	R	R'	A	A'	$nA - A'$
0,6	0,919	0,052	0,037	0,029	0,044	0,000
1,2	0,821	0,075	0,020	0,105	0,160	0,002
1,8	0,716	0,103	0,001	0,181	0,284	0,000
2,35	0,640	0,125	0,001	0,235	0,356	0,006
2,95	0,599	0,142	0,002	0,259	0,399	0,002
3,50	0,572	0,154	0,006	0,274	0,422	0,001
4,10	0,548	0,161	0,009	0,291	0,443	0,007
4,7	0,550	0,165	0,011	0,285	0,439	0,000
5,3	0,542	0,172	0,013	0,286	0,445	— 0,004
10,55	0,454	0,273	0,134	0,273	0,412	0,009
21,1	0,290	0,478	0,351	0,232	0,359	0,008
31,7	0,153	0,593	0,486	0,254	0,361	0,030
42,2	0,084	0,660	0,575	0,256	0,342	0,053
52,8	0,049	0,683	0,621	0,268	0,331	0,082
63,3	0,031	0,674	0,649	0,295	0,321	0,134
73,9	0,022	0,675	0,667	0,304	0,312	0,156
84,4	0,015	0,668	0,674	0,317	0,311	0,177
95,0	0,012	0,679	0,669	0,309	0,319	0,156

5 780 Å

e_m en mμ	T	R	R'	A	A'	$nA - A'$
0,6	0,909	0,056	0,034	0,036	0,057	0,002
1,2	0,826	0,074	0,017	0,100	0,157	— 0,002
1,8	0,749	0,092	0,006	0,159	0,245	0,000
2,35	0,704	0,104	0,002	0,191	0,294	0,002
2,95	0,678	0,115	0,002	0,207	0,320	— 0,001
3,50	0,656	0,123	0,003	0,221	0,341	0,001
4,10	0,626	0,130	0,004	0,244	0,370	0,007
4,7	0,628	0,134	0,005	0,238	0,367	0,000
5,3	0,618	0,139	0,006	0,243	0,376	0,000
10,55	0,558	0,205	0,083	0,237	0,359	0,008
21,1	0,378	0,366	0,242	0,256	0,380	0,016
31,7	0,226	0,493	0,376	0,281	0,398	0,036
42,2	0,133	0,567	0,474	0,300	0,392	0,071
52,8	0,082	0,605	0,537	0,313	0,382	0,101
63,3	0,053	0,622	0,579	0,325	0,368	0,134
73,9	0,035	0,623	0,609	0,342	0,357	0,172
84,4	0,026	0,627	0,620	0,347	0,354	0,183
95,0	0,021	0,629	0,616	0,350	0,363	0,177

5 461 Å

e_m en mμ	T	R	R'	A	A'	$nA - A'$
0,60	0,903	0,056	0,034	0,041	0,063	0,001
1,20	0,833	0,071	0,021	0,096	0,145	0,003
1,80	0,779	0,085	0,009	0,136	0,212	— 0,002
2,35	0,740	0,094	0,005	0,166	0,255	0,001
2,95	0,717	0,102	0,003	0,181	0,280	— 0,001
3,50	0,697	0,109	0,003	0,194	0,300	0,000
4,10	0,663	0,114	0,003	0,223	0,335	0,008
4,7	0,667	0,119	0,003	0,215	0,331	0,001
5,3	0,660	0,120	0,004	0,220	0,336	0,004
10,55	0,597	0,172	0,053	0,232	0,350	0,008
21,10	0,433	0,300	0,170	0,267	0,397	0,015
31,7	0,270	0,418	0,296	0,312	0,434	0,049
42,2	0,170	0,489	0,385	0,340	0,444	0,082
52,8	0,111	0,530	0,445	0,359	0,444	0,111
63,3	0,072	0,550	0,492	0,378	0,435	0,148
73,9	0,051	0,557	0,532	0,392	0,417	0,189
84,4	0,037	0,569	0,549	0,394	0,414	0,196
95,0	0,031	0,580	0,563	0,389	0,406	0,195

5 085 Å

e_m en mμ	T	R	R'	A	A'	$nA - A'$
0,60	0,906	0,056	0,035	0,039	0,060	0,000
1,20	0,849	0,068	0,021	0,084	0,130	0,000
1,80	0,805	0,078	0,013	0,117	0,182	— 0,001
2,35	0,773	0,085	0,008	0,142	0,219	0,001
2,95	0,747	0,093	0,005	0,160	0,248	0,000
3,50	0,728	0,099	0,003	0,173	0,269	0,000
4,10	0,699	0,104	0,002	0,198	0,299	0,007
4,7	0,695	0,108	0,001	0,197	0,303	0,002
5,3	0,689	0,108	0,001	0,203	0,309	0,005
10,55	0,616	0,145	0,021	0,239	0,363	0,008
21,10	0,464	0,231	0,088	0,306	0,448	0,024
31,7	0,317	0,315	0,175	0,369	0,508	0,062
42,2	0,220	0,369	0,247	0,411	0,533	0,103
52,8	0,155	0,402	0,297	0,443	0,548	0,137
63,3	0,109	0,414	0,337	0,477	0,554	0,183
73,9	0,081	0,422	0,372	0,497	0,546	0,223
84,4	0,064	0,426	0,385	0,510	0,551	0,238
95,0	0,053	0,431	0,385	0,516	0,562	0,237

4 800 Å

e_m en mμ	T	R	R'	A	A'	$nA - A'$
0,60	0,906	0,056	0,035	0,038	0,059	0,000
1,20	0,853	0,066	0,023	0,080	0,123	0,001
1,80	0,819	0,077	0,015	0,104	0,167	— 0,007
2,35	0,776	0,085	0,009	0,139	0,215	0,001
2,95	0,750	0,092	0,006	0,158	0,243	— 0,001
3,50	0,727	0,099	0,003	0,174	0,270	0,000
4,10	0,697	0,104	0,002	0,199	0,301	0,007
4,7	0,696	0,108	0,001	0,197	0,303	0,001
5,3	0,690	0,109	0,001	0,201	0,309	0,002
10,55	0,589	0,145	0,009	0,266	0,402	0,010
21,10	0,424	0,223	0,058	0,354	0,518	0,030
31,70	0,293	0,286	0,134	0,421	0,574	0,088
42,2	0,207	0,324	0,192	0,469	0,600	0,126
52,8	0,151	0,338	0,229	0,511	0,621	0,171
63,3	0,107	0,338	0,260	0,556	0,634	0,227
73,9	0,079	0,333	0,281	0,588	0,641	0,271
84,4	0,065	0,332	0,287	0,603	0,648	0,287
95,0	0,054	0,327	0,285	0,619	0,661	0,298

4 358 Å

e_m en mμ	T	R	R'	A	A'	$nA - A'$
0,60	0,906	0,056	0,035	0,039	0,059	0,001
1,20	0,852	0,068	0,024	0,080	0,124	0,001
1,80	0,815	0,079	0,015	0,106	0,170	— 0,005
2,35	0,766	0,088	0,009	0,146	0,225	0,001
2,95	0,738	0,097	0,005	0,165	0,257	0,000
3,50	0,708	0,105	0,003	0,187	0,289	0,002
4,10	0,681	0,110	0,002	0,209	0,317	0,008
4,7	0,674	0,115	0,001	0,211	0,325	0,003
5,3	0,667	0,117	0,001	0,216	0,332	0,004
10,55	0,533	0,167	0,013	0,300	0,454	0,012
21,10	0,349	0,259	0,081	0,392	0,570	0,039
31,70	0,226	0,321	0,167	0,453	0,607	0,097
42,2	0,152	0,345	0,221	0,503	0,626	0,154
52,8	0,104	0,346	0,245	0,550	0,650	0,204
63,3	0,072	0,339	0,261	0,589	0,667	0,247
73,9	0,053	0,328	0,272	0,619	0,675	0,287
84,4	0,041	0,322	0,267	0,637	0,692	0,298
95,0	0,034	0,308	0,261	0,658	0,705	0,316

4 046 Å

e_m en mμ	*T*	*R*	*R'*	*A*	*A'*	*nA* — *A'*
0,60	0,906	0,057	0,035	0,038	0,059	— 0,001
1,20	0,846	0,069	0,023	0,085	0,131	0,002
1,80	0,802	0,081	0,014	0,117	0,184	0,002
2,35	0,759	0,091	0,009	0,150	0,233	0,001
2,95	0,726	0,101	0,005	0,174	0,269	0,001
3,50	0,698	0,109	0,003	0,193	0,299	0,001
4,10	0,672	0,114	0,002	0,214	0,326	0,007
4,7	0,660	0,119	0,002	0,221	0,339	0,006
5,3	0,652	0,122	0,001	0,227	0,347	0,006
10,55	0,506	0,181	0,019	0,313	0,476	0,012
21,10	0,320	0,278	0,096	0,402	0,584	0,042
31,70	0,201	0,333	0,188	0,466	0,611	0,114
42,2	0,130	0,352	0,237	0,518	0,633	0,173
52,8	0,086	0,349	0,252	0,565	0,662	0,217
63,3	0,057	0,339	0,258	0,604	0,685	0,255
73,9	0,042	0,320	0,265	0,638	0,693	0,301
84,4	0,033	0,315	0,260	0,653	0,708	0,308
95,0	0,027	0,302	0,253	0,671	0,720	0,325

3 610 Å

e_m en mμ	*T*	*R*	*R'*	*A*	*A'*	*nA* — *A'*
0,60	0,898	0,059	0,034	0,043	0,068	— 0,001
1,20	0,841	0,071	0,022	0,088	0,137	0,000
1,80	0,787	0,084	0,013	0,129	0,200	0,007
2,35	0,743	0,096	0,008	0,161	0,249	0,003
2,95	0,713	0,105	0,004	0,182	0,283	0,003
3,50	0,682	0,113	0,003	0,205	0,315	0,006
4,10	0,660	0,119	0,002	0,221	0,338	0,008
4,7	0,646	0,123	0,002	0,231	0,352	0,009
5,3	0,635	0,129	0,001	0,236	0,364	0,005
10,55	0,485	0,190	0,024	0,325	0,491	0,017
21,10	0,295	0,285	0,108	0,420	0,597	0,058
31,70	0,180	0,335	0,202	0,485	0,618	0,139
42,2	0,112	0,342	0,239	0,546	0,650	0,203
52,8	0,072	0,331	0,244	0,596	0,684	0,247
63,3	0,046	0,320	0,249	0,634	0,705	0,285
73,9	0,033	0,306	0,246	0,662	0,721	0,312
84,4	0,025	0,294	0,238	0,681	0,737	0,326
95,0	0,021	0,256	0,223	0,720	0,753	0,371

3 341 Å

e_m en mμ	*T*	*R*	*R'*	*A*	*A'*	*nA* — *A'*
0,60	0,890	0,061	0,034	0,049	0,076	0,001
1,20	0,837	0,074	0,022	0,090	0,141	0,001
1,80	0,780	0,086	0,013	0,134	0,207	0,007
2,35	0,738	0,098	0,008	0,164	0,255	0,002
2,95	0,705	0,108	0,004	0,187	0,292	0,003
3,50	0,675	0,117	0,003	0,209	0,322	0,006
4,10	0,646	0,124	0,003	0,230	0,351	0,010
4,7	0,631	0,125	0,003	0,244	0,367	0,016
5,3	0,619	0,126	0,003	0,255	0,378	0,022
10,55	0,468	0,195	0,026	0,337	0,506	0,023
21,10	0,274	0,289	0,125	0,437	0,601	0,084
31,7	0,163	0,329	0,213	0,509	0,622	0,176
42,2	0,097	0,322	0,244	0,581	0,660	0,252
52,8	0,057	0,294	0,239	0,650	0,704	0,314
63,3	0,036	0,276	0,230	0,689	0,734	0,346
73,9	0,024	0,264	0,221	0,713	0,756	0,363
84,4	0,018	0,253	0,214	0,730	0,768	0,377
95,0	0,015	0,243	0,212	0,742	0,773	0,391

2 967 Å

e_m en mμ	*T*	*R*	*R'*	*A*	*A'*	*nA* — *A'*
0,60	0,889	0,063	0,033	0,048	0,079	— 0,003
1,20	0,821	0,077	0,020	0,102	0,159	0,003
1,80	0,764	0,092	0,012	0,145	0,225	0,004
2,35	0,719	0,104	0,006	0,177	0,275	0,004
2,95	0,681	0,115	0,004	0,204	0,316	0,006
3,50	0,648	0,124	0,003	0,228	0,349	0,011
4,10	0,620	0,131	0,003	0,249	0,377	0,016
4,7	0,602	0,134	0,003	0,264	0,395	0,022
5,3	0,596	0,133	0,004	0,271	0,400	0,028
10,55	0,438	0,207	0,036	0,355	0,525	0,035
21,10	0,265	0,301	0,152	0,433	0,584	0,100
31,7	0,130	0,330	0,234	0,540	0,636	0,216
42,2	0,072	0,316	0,252	0,612	0,676	0,291
52,8	0,039	0,274	0,238	0,688	0,723	0,362
63,3	0,023	0,265	0,231	0,713	0,747	0,378
73,9	0,014	0,261	0,221	0,725	0,765	0,379
84,4	0,011	0,250	0,216	0,739	0,773	0,394
95,0	0,010	0,249	0,216	0,741	0,775	0,395

2 753 Å

e_m en mμ	*T*	*R*	*R'*	*A*	*A'*	*nA* — *A'*
0,6	0,895	0,065	0,032	0,040	0,073	— 0,009
1,20	0,806	0,081	0,019	0,113	0,175	— 0,005
1,80	0,752	0,095	0,010	0,153	0,238	0,004
2,35	0,704	0,107	0,005	0,189	0,291	0,008
2,95	0,672	0,117	0,003	0,211	0,325	0,010
3,50	0,634	0,128	0,002	0,238	0,364	0,014
4,10	0,611	0,134	0,003	0,255	0,386	0,019
4,7	0,593	0,137	0,003	0,270	0,404	0,025
5,3	0,583	0,135	0,004	0,282	0,413	0,035
10,55	0,427	0,210	0,039	0,362	0,533	0,042
21,10	0,230	0,303	0,161	0,467	0,609	0,132
31,7	0,121	0,323	0,237	0,557	0,642	0,241
42,2	0,066	0,301	0,254	0,633	0,680	0,325
52,8	0,033	0,278	0,240	0,689	0,727	0,366
63,3	0,019	0,259	0,234	0,723	0,748	0,400
73,9	0,012	0,255	0,226	0,733	0,762	0,403
84,4	0,012	0,248	0,220	0,741	0,768	0,408
95,0	0,010	0,250	0,223	0,740	0,767	0,408

2 536 Å

e_m en mμ	*T*	*R*	*R'*	*A*	*A'*	*nA* — *A'*
0,6	0,899	0,065	0,030	0,036	0,071	0,014
1,20	0,798	0,083	0,018	0,119	0,184	0,006
1,80	0,752	0,097	0,009	0,151	0,239	0,002
2,35	0,703	0,108	0,005	0,189	0,293	0,009
2,95	0,667	0,118	0,002	0,215	0,331	0,013
3,50	0,637	0,127	0,001	0,236	0,362	0,015
4,10	0,611	0,131	0,002	0,258	0,387	0,025
4,7	0,626	0,133	0,003	0,241	0,371	0,014
5,3	0,590	0,130	0,004	0,280	0,406	0,042
10,55	0,444	0,207	0,037	0,350	0,520	0,039
21,10	0,238	0,272	0,154	0,491	0,608	0,177
31,7	0,128	0,300	0,217	0,572	0,656	0,259
42,2	0,066	0,269	0,230	0,665	0,704	0,358
52,8	0,033	0,253	0,218	0,714	0,749	0,392
63,3	0,019	0,232	0,215	0,749	0,767	0,431
73,9	0,010	0,223	0,210	0,767	0,780	0,446
84,4	0,011	0,218	0,202	0,771	0,788	0,446
95,0	0,010	0,212	0,215	0,778	0,775	0,469

couche mince, présentent généralement une variation de pente très nette, ou même un maximum relatif, pour une épaisseur voisine de 5 mμ. T est alors de l'ordre de 0,55 à 0,70. Ce maximum de T a présentent aussi, pour la même épaisseur de 4 à 5 mμ, une variation de pente très nette et même un minimum pour les deux radiations de longueur d'onde 2 753 Å et 2 536 Å.

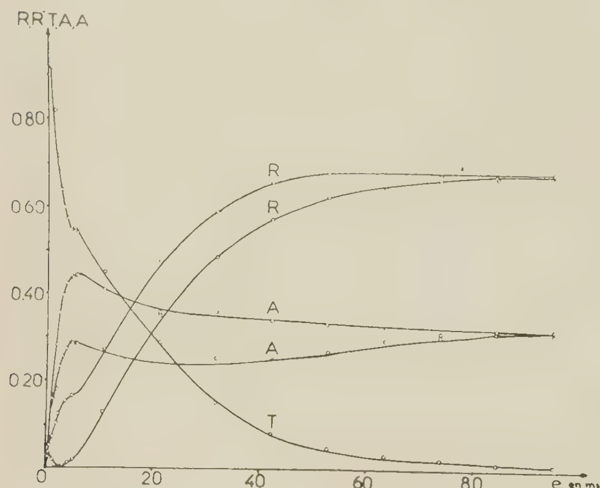


Fig. 1. — Courbes montrant la variation de R, R', T, A et A' en fonction de l'épaisseur massique, en mμ, pour $\lambda = 6\,438$ Å.

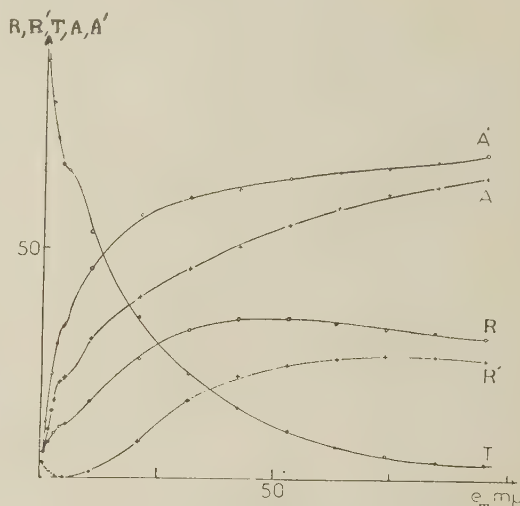


Fig. 3. — Courbes montrant la variation de R, R', T, A et A' en fonction de l'épaisseur massique, en mμ, pour $\lambda = 4\,358$ Å.

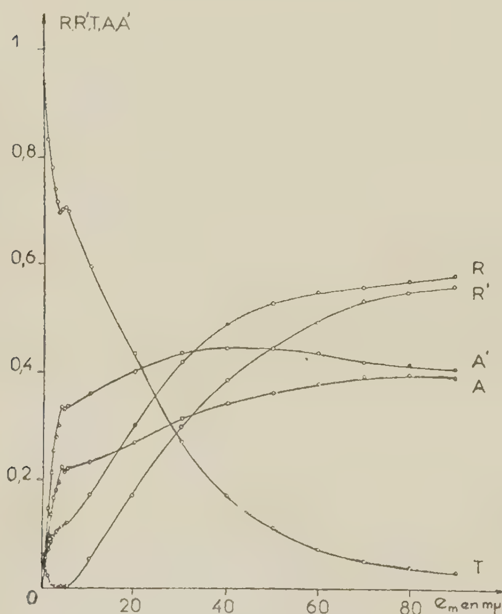


Fig. 2. — Courbes montrent la variation de R, R', T, A et A' en fonction de l'épaisseur massique, en mμ, pour $\lambda = 5\,461$ Å.

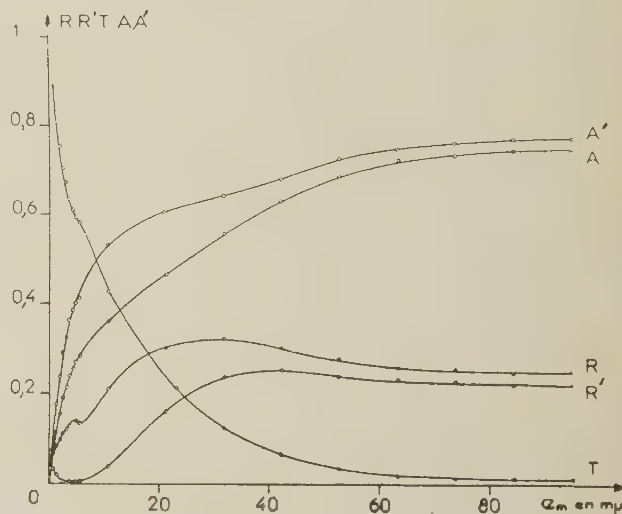


Fig. 4. — Courbes montrant la variation de R, R', T, A et A' en fonction de l'épaisseur massique, en mμ, pour $\lambda = 2\,753$ Å.

été trouvé expérimentalement par Faust [4]. Nous montrerons ultérieurement que, comme le laissaient prévoir P. Rouard, D. Malé et J. Trompette [5], ce maximum est plus ou moins net suivant la vitesse d'évaporation utilisée.

Les courbes représentant la variation du facteur de réflexion côté air R en fonction de l'épaisseur

Les courbes représentant la variation du facteur de réflexion côté quartz R' en fonction de l'épaisseur présentent un minimum pratiquement nul. On sait que dans le cas de l'or l'épaisseur de la couche mince correspondant à ce minimum varie en fonction de la longueur d'onde, ce qui permet d'expliquer les belles colorations des couches très minces d'or. Dans le présent travail ce minimum a été obtenu pour des épaisseurs comprises entre 2 et

7 mμ. La figure 5 donne la variation de cette épaisseur en fonction de la longueur d'onde utilisée.

On remarque que, pour une épaisseur donnée, R est pratiquement toujours supérieur à R'. De plus, les deux courbes relatives à R et R' pour une même longueur d'onde présentent, surtout au-dessous de 4 800 Å, un maximum qui va en s'accentuant au fur et à mesure que la longueur d'onde diminue. Le maximum de R se produit toujours pour une épaisseur plus faible que celle correspondant au maximum de R'. On voit nettement que cette épaisseur diminue avec la longueur d'onde utilisée. Le maximum relatif à R se produit pour des épaisseurs comprises entre 30 et 55 mμ tandis que celui relatif à R' se produit pour des épaisseurs comprises entre 40 et 85 mμ.

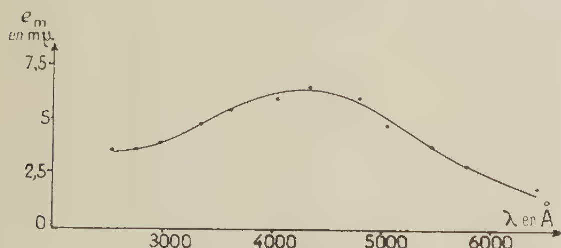


Fig. 5. — Courbe montrant la variation de l'épaisseur massique pour laquelle a lieu le minimum de R', en fonction de la longueur d'onde.

On remarquera que, pour des radiations de longueurs d'onde inférieures ou égales à 4 800 Å, les absorptions A et A' augmentent assez régulièrement lorsque l'épaisseur de la couche d'or passe de 0 à 95 mμ. Par contre, pour des radiations de longueurs d'onde supérieures à 4 800 Å, l'absorption A' surtout peut présenter un maximum et diminuer ensuite notablement lorsque l'épaisseur de la couche d'or augmente. Ce fait, qui semble paradoxal, est très net par exemple pour la longueur d'onde 6 438 Å.

Les résultats obtenus indiquent aussi que l'énergie absorbée par la couche mince d'or, lorsque la lumière la traverse en arrivant du côté support, est plus grande que l'énergie absorbée par la couche lorsque la lumière la traverse en arrivant du côté air.

B) Variation des divers facteurs avec la longueur d'onde. — Les figures 6, 7, 8, 9, 10 montrent comment varient en fonction de la longueur d'onde, pour une couche mince donnée, les facteurs de transmission T, de réflexion R et R' et les coefficients d'absorption A et A'. Cette étude a été faite pour 4 couches d'épaisseurs massiques égales à 10, 30, 60 et 90 mμ. Les courbes relatives à T présentent un maximum pour des radiations de longueurs d'onde comprises entre 4 900 et 5 100 Å. Ce maximum tend du reste à se déplacer légèrement vers les grandes longueurs d'onde lorsque l'épaisseur de la couche augmente.

Les courbes relatives à R, comme celles relatives à R' peuvent avoir des allures différentes selon l'épaisseur de la couche d'or étudiée. Pour des épaisseurs de 10 et 30 mμ ces courbes présentent un minimum aux environs de 4 800 à 4 900 Å tandis que pour des couches d'épaisseurs 60 et 90 mμ ces courbes ne présentent plus qu'une brusque variation de pente pour ces mêmes longueurs d'onde.

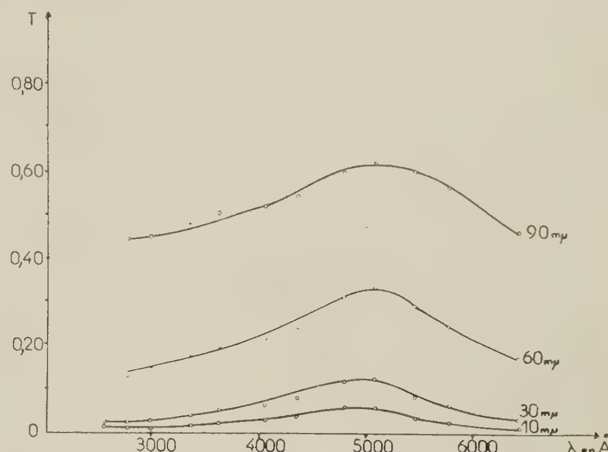


Fig. 6. — Courbes montrant, pour quatre couches minces d'or d'épaisseurs massiques égales à 10, 30, 60 et 90 mμ, la variation du facteur de transmission T en fonction de la longueur d'onde.

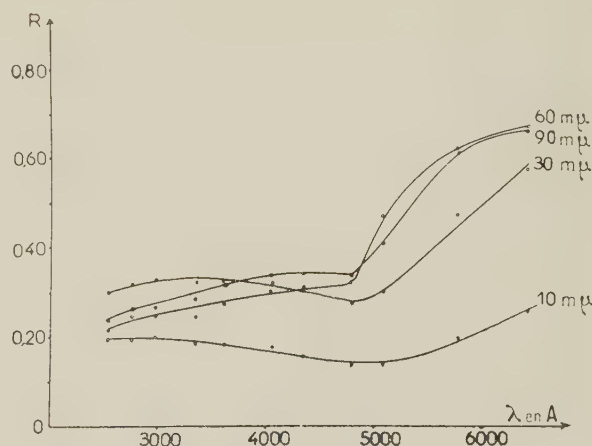


Fig. 7. — Courbes montrant, pour quatre couches d'or d'épaisseurs massiques égales à 10, 30, 60 et 90 mμ, la variation du facteur de réflexion côté air R en fonction de la longueur d'onde.

Les courbes relatives aux absorptions A et A' présentent une brusque variation de pente pour des radiations de longueurs d'onde comprises entre 5 000 et 5 500 Å. Elles augmentent assez régulièrement lorsque la longueur d'onde diminue. On notera qu'entre 6 000 et 6 500 Å l'absorption côté

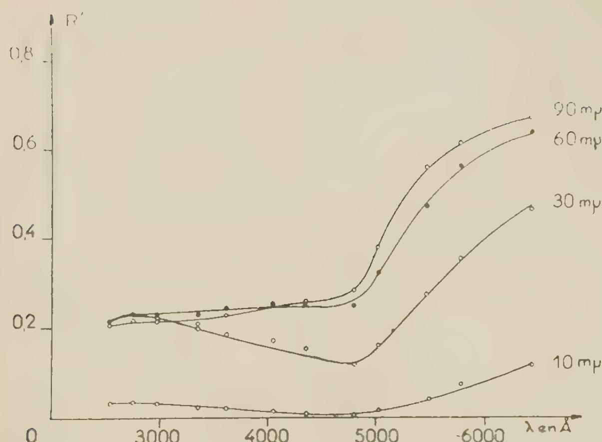


Fig. 8. — Courbes montrant, pour quatre couches d'or d'épaisseurs massiques égales à 10, 30, 60 et 90 mμ, la variation du facteur de réflexion côté support R' en fonction de la longueur d'onde.

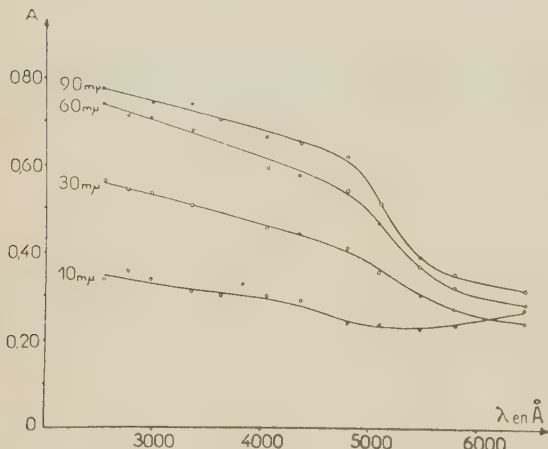


Fig. 9. — Courbes montrant, pour quatre couches d'or d'épaisseurs massiques égales à 10, 30, 60 et 90 mμ, la variation du coefficient d'absorption côté air A en fonction de la longueur d'onde.

support A' augmente régulièrement lorsque l'épaisseur de la couche diminue de 90 à 10 mμ. C'est ainsi que, pour une couche d'or de 10 mμ d'épaisseur et pour la longueur d'onde 6 438 Å, l'absorption A' est de 0,42, alors que pour une couche d'or de 90 mμ d'épaisseur elle n'est plus que de 0,32. Ceci est dû évidemment au maximum déjà noté de la courbe donnant la variation de A' en fonction de l'épaisseur de la couche pour la longueur d'onde 6 438 Å.

On constate enfin que la relation de Wolter : $nA - A' = 0$ est bien vérifiée pour les faibles épaisseurs et pour toutes les radiations étudiées. Cette relation est ensuite de moins en moins bien vérifiée lorsque l'épaisseur de la couche augmente ou lorsque la longueur d'onde de la radiation utilisée diminue.

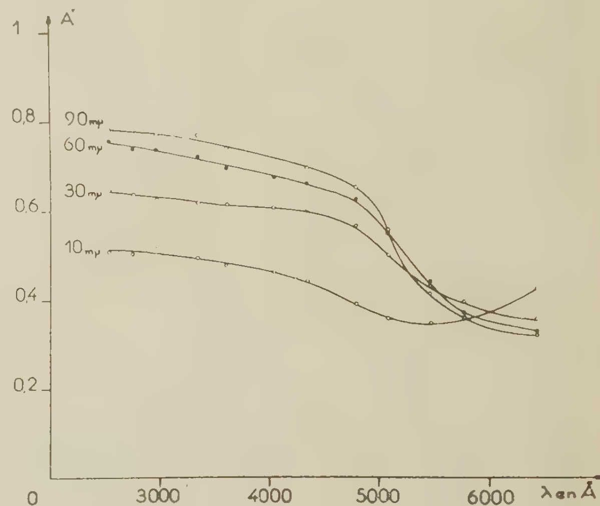


Fig. 10. — Courbes montrant pour quatre couches d'or d'épaisseurs massiques égales à 10, 30, 60 et 90 mμ, la variation du coefficient d'absorption côté support A' en fonction de la longueur d'onde.

On sait que la détermination simultanée des constantes optiques et de l'épaisseur réelle des couches par la méthode de Malé est possible avec les seules mesures de T, R et R' si la relation de Wolter n'est pas vérifiée, sinon on doit adjoindre à ces valeurs une mesure de variation de phase [6]. On peut donc en conclure pour les couches d'or étudiées ici, que dans l'ultraviolet lointain (de 2 500 à 3 000 Å) les mesures de R, R' et T suffiront à la détermination des trois inconnues précédentes dès qu'on aura une couche d'or d'épaisseur supérieure à 5 mμ. De 3 000 à 4 000 Å les mêmes déterminations ne seront possibles, sans le secours des mesures de variations de phase, que pour des couches d'or d'épaisseurs supérieures à 15 et 20 mμ. Enfin, pour les trois dernières longueurs d'onde étudiées, on voit que les mesures de variation de phase deviennent indispensables pour toutes les couches d'or d'épaisseurs inférieures à 30 ou 40 mμ.

Manuscrit reçu le 27 décembre 1958.

BIBLIOGRAPHIE

[1] Malé (D.), *Ann. Physique*, 1954, **9**, 10.
[2] Schopper (H.), *Z. Physik*, 1951, **130**, 565.
[3] Trompette (J.), *J. Physique Rad.*, 1956, **17**, 124.
[4] Faust (R. C.), *Phil. Mag.*, 1950, **41**, 1238.
[5] Rouard (P.), Malé (D.) et Trompette (J.), *J. Physique Rad.*, 1953, **14**, 587.
[6] Malé (D.), *C. R. Acad. Sc.*, 1952, **135**, 1630.

ÉTUDE DE LA DIFFUSION MULTIPLE COHÉRENTE DE LA LUMIÈRE DE RÉSONANCE OPTIQUE. APPLICATION AU NIVEAU 6 $^3P_1$ DU MERCURE.

I. ÉTUDE THÉORIQUE.

(1re partie)

Par J. P. BARRAT,
Laboratoire de Physique, École normale supérieure, Paris.

Résumé. — On étudie les effets de la diffusion multiple de la lumière de résonance optique sur les résultats des mesures de durées de vie des niveaux atomiques excités. Dans ce premier article, on développe un formalisme permettant de tenir compte des effets du champ de rayonnement sur les états excités des atomes. On retrouve par cette méthode les résultats classiques concernant le cas d'un seul atome (diffusion simple). En l'appliquant au cas de 2 atomes, on trouve que les équations d'évolution des amplitudes de probabilité des états excités sont couplées par des coefficients qui correspondent physiquement au passage de l'excitation d'un atome à un autre par l'intermédiaire d'un photon optique (diffusion multiple).

Abstract. — Imprisonment of optical resonance radiation leads to perturbations in lifetime measurements of atomic excited states (narrowing of magnetic resonance lines observed by the double resonance method). In this first paper, a formalism is developped to account for the effect of the radiation field on the atomic excited states. By applying this method to the case of a single atom, one finds the well known results concerning single scattering. In the case of two atoms, the equations obtained for the time variation of the probability amplitudes of the excited states are coupled by coefficients which are seen to represent the transmission of the excitation from one atom to another by means of an optical photon (multiple scattering).

Introduction. — La méthode de la double résonance, due à Kastler et Brossel [1], destinée à l'étude des niveaux atomiques excités, a été appliquée pour la première fois par Brossel [2] dans le cas du niveau de résonance $6\,{}^3P_1$ des divers isotopes du mercure. Elle permet en principe de déterminer la structure de ce niveau et sa durée de vie τ. Les résultats de Brossel concernant la durée de vie ont été remis en question à la suite des travaux de Blamont [3]. L'expérience montre que la largeur $\Delta\omega_0$ des raies de résonance magnétique, aux très faibles niveaux de radiofréquence, n'est pas liée à τ par la relation prévue $\Delta\omega_0 = 2/\tau$, mais est en réalité une fonction des conditions expérimentales. En particulier, les raies s'affinent lorsque la densité de vapeur du mercure soumis à la double résonance augmente. Cet effet a pu être attribué avec certitude à la diffusion multiple cohérente des photons de résonance optique de la raie $6\,{}^1S_0 - 6\,{}^3P_1$ (2 537 Å) par les atomes de mercure de la vapeur [4] La dépolarisation de la lumière de résonance optique, l'augmentation du temps d'emprisonnement du rayonnement, observées lorsque la densité de vapeur croît, ont la même origine. Les résultats expérimentaux, concernant ce phénomène, sont déjà partiellement publiés [4], [5], [6]. Son étude théorique impose de reprendre à la base la théorie de l'absorption et de l'émission des photons par un système atomique et le problème même de la résonance magnétique dans l'état excité d'un atome. En effet les raisonnements habituellement faits ne font pas intervenir les effets de cohérence, dont nous avons essayé de rendre compte par la théorie développée ci-dessous.

Les calculs que nous avons faits s'appliquent essentiellement au cas du mercure, c'est-à-dire d'une transition optique entre un niveau fondamental pour lequel $J = 0$ et un niveau excité de résonance pour lequel $J = 1$; on suppose en outre que le noyau de l'atome a un spin nucléaire I et que la structure hyperfine est grande devant la largeur Doppler de la raie, si bien que la diffusion multiple se produit indépendamment pour chacune de ses composantes hyperfines. Les résultats obtenus sont également valables pour toute transition optique reliant 2 niveaux de moments angulaires quelconques (qui correspondent aux moments angulaires I et F de notre calcul) pourvu que la raie correspondante soit bien isolée dans le spectre. D'autre part, nous avons dû, pour conduire le calcul jusqu'au bout, faire un certain nombre d'hypothèses restrictives, satisfaites dans les conditions de la plupart de nos expériences, que nous discuterons à la fin de cet exposé.

Dans un premier article, nous indiquerons la méthode utilisée pour tenir compte en détail des effets du champ de rayonnement sur les états excités des atomes. Nous appliquerons cette méthode d'abord au cas de la diffusion simple, ce qui nous permettra de retrouver les résultats classiques de Brossel [2] et nous étudierons ensuite le cas de 2 atomes. Dans une publication ultérieure, nous généraliserons au cas de l'ensemble des $\mathcal{N}$ atomes d'une vapeur et nous appliquerons nos

résultats aux divers cas concrets rencontrés dans nos expériences (calcul explicite des taux de polarisation, durées de cohérence, etc...). Une troisième publication résumera l'ensemble des résultats expérimentaux en les comparant aux prévisions théoriques.

1. Méthode de traitement du champ de rayonnement. — Le vecteur d'état Ψ du système constitué par les $\mathfrak{N}$ atomes identiques d'une vapeur et le champ de rayonnement peut être décomposé en superposition linéaire d'états orthonormés $|f, \alpha >$ et $|e, \beta >$:

$$\Psi(t) = \sum_{\alpha} a_{f\alpha}(t)\, |f, \alpha > + \sum_{\beta} a_{e\beta}(t) |\, e, \beta >. \qquad (I,1)$$

Dans les états $|f, \alpha >$, d'énergie E_α, les atomes sont tous dans un sous-niveau Zeeman de l'état fondamental, en présence d'un photon, caractérisé par son vecteur d'onde et une direction de polarisation et dont l'énergie est voisine de celle correspondant à l'excitation du niveau de résonance de l'un des atomes. Dans les états $|e, \beta >$, d'énergie E_β, l'un des atomes est porté dans un sous-niveau Zeeman de son niveau de résonance, aucun photon n'étant présent. Les lettres α ou β indiquent l'ensemble des nombres quantiques et paramètres qui spécifient chaque état.

Nous négligeons ainsi tous les états dans lesquels plusieurs atomes sont excités en même temps, ceux où plusieurs photons sont présents et ceux où des atomes sont excités dans d'autres niveaux que le niveau de résonance. Ces approximations sont classiques dans l'étude de la résonance optique [6, 7, 8]. La dernière revient à supposer que chaque atome n'a que 2 niveaux, ayant chacun une structure Zeeman.

L'Hamiltonien du système a la forme (en l'absence d'une perturbation par la radiofréquence) : $\mathcal{H} = \mathcal{H}_0 + \mathcal{H}_I$ (I,2) formule dans laquelle :

— $\mathcal{H}_0$ est un Hamiltonien diagonal. Ses éléments de matrice entre les états $|f, \alpha >$ ou $|e, \beta >$ sont les énergies E_α et E_β de ces états :

$$\begin{cases} < f, \alpha\, |\mathcal{H}_0|\, f, \alpha > = E_\alpha \\ < e, \beta\, |\mathcal{H}_0|\, e, \beta > = E_\beta. \end{cases} \qquad (I,3)$$

— $\mathcal{H}_I$ est une partie non diagonale de l'Hamiltonien et n'a d'éléments de matrice non nuls qu'entre des états du type $|f, \alpha >$ et des états du type $|e, \beta >$. $\mathcal{H}_I$ est la partie du champ de rayonnement responsable des transitions dipolaires électriques entre l'état excité et l'état fondamental des atomes, avec absorption ou émission d'un photon. Ses éléments de matrice peuvent éventuellement dépendre du temps (cf. paragraphe 2).

En présence d'un champ magnétique de radiofréquence, l'Hamiltonien contient un terme supplémentaire $\mathcal{H}_{RF}$, dont les éléments de matrice relient entre eux les états $|e, \beta >$ correspondant à l'excitation du même atome et ont une dépendance du temps en $e^{\pm i\omega t}$; nous négligeons ainsi l'action de la radiofréquence sur l'état fondamental, ce qui est légitime si les fréquences de résonance sont très différentes dans l'état fondamental et dans l'état excité pour un même champ magnétique statique (cas du mercure). Un changement de variables convenable nous permettra de nous ramener au même problème mathématique qu'en l'absence de radiofréquence. Remarquons que nous traitons de manière semi-classique la partie $\mathcal{H}_{RF}$ du champ de rayonnement responsable des transitions dipolaires magnétiques entre sous-niveaux Zeeman, c'est-à-dire que les éléments de matrice correspondant à l'absorption et à l'émission d'un photon de radiofréquence seront considérés comme égaux ; ce traitement est justifié par la valeur négligeable des probabilités d'émission spontanée pour ces transitions, comparées aux probabilités des transitions induites (en d'autres termes, le nombre de photons de fréquence hertzienne par cm³ est toujours très grand).

La dépendance du temps de $\Psi(t)$, c'est-à-dire des coefficients $a_{f\alpha}(t)$ et $a_{e\beta}(t)$ de son développement (I,1) sera déterminée par l'équation de Schrödinger [1]

$$\frac{i\mathrm{d}\,\Psi}{\mathrm{d}t}(t) = [\mathcal{H}_0 + \mathcal{H}_I(t)]\, \Psi(t). \qquad (I,4)$$

Nous passerons alors en représentation d'interaction, posant

$$\begin{cases} \Phi(t) = e^{i\mathcal{H}_0 t}\, \Psi(t) = \sum_{\alpha} b_{f\alpha}(t)\, |f, \alpha > + \sum_{\beta} b_{e\beta}(t) |\, e, \beta > & (I,5) \\ \mathcal{H}'_I(t) = e^{i\mathcal{H}_0 t}\, \mathcal{H}_I(t)\, e^{-i\mathcal{H}_0 t} & (I,6) \end{cases}$$

avec
$$\begin{cases} b_{f,\alpha}(t) = a_{f\alpha}(t)\, e^{iE_\alpha t} \\ b_{e,\beta}(t) = a_{e\beta}(t)\, e^{iE_\beta t} \end{cases} \qquad (I,7)$$

$\Phi(t)$ satisfait à l'équation

$$\frac{i\mathrm{d}\;\Phi(t)}{\mathrm{d}t} = \mathcal{H}'_I(t)\; \Phi(t). \qquad (I,8)$$

La résolution de (I,8) s'effectue de façon approchée suivant une méthode classique en Électrodynamique Quantique [7, 8, 9] consistant à éliminer les coefficients $b_{f\alpha}(t)$. On intègre (I,8) de 0 à t :

$$\Phi(t) = \Phi(0) - i \int_0^t \mathcal{H}'_I(t')\; \Phi(t')\, \mathrm{d}t'. \qquad (I,9)$$

Le 2e membre de (I,9) est alors substitué à $\Phi(t)$ au 2e membre de (I,8) :

$$\frac{i\mathrm{d}\;\Phi(t)}{\mathrm{d}t} = \mathcal{H}'_I(t)\; \Phi(0) - i \int_0^t \mathcal{H}'_I(t)\, \mathcal{H}'_I(t')\;\; \Phi(t')\, \mathrm{d}t'. \qquad (I,10)$$

[1] Dans tout ce qui suit, on a utilisé un système d'unités dans lequel $\hbar = c = 1$.

En portant le développement (I,5) et en multipliant par $< e, \beta|$, on obtient

$$\frac{i\mathrm{d}}{\mathrm{d}t} b_{e\beta}(t) = < e, \beta\, |\mathcal{H}'_{\mathrm{I}}(t)|\, \Phi(0) >$$
$$- i \sum_{e\beta'} \int_0^t < e\, \beta\, |\mathcal{H}'_{\mathrm{I}}(t)\, \mathcal{H}'_{\mathrm{I}}(t')|\, e\, \beta' > b_{e\beta'}(t')\mathrm{d}t' \quad \text{(I,11)}$$

(en tenant compte du fait que les éléments de matrice tels que $< e\, \beta\, |\mathcal{H}'_{\mathrm{I}}(t)\, \mathcal{H}'_{\mathrm{I}}(t')|\, f, \alpha >$ sont nuls d'après les hypothèses faites sur $\mathcal{H}_{\mathrm{I}}(t)$).

En général $\Phi(0)$ sera un état excité $|e, \beta_0 >$ et le 1er terme du 2e membre de (I,11) sera nul. Cette condition initiale n'a pas de réalité physique. Elle signifie que la perturbation due au champ de rayonnement commence à agir seulement à partir d'un instant initial déterminé. Mais on peut montrer [7, 8, 9] que les effets dus à l'établissement de la perturbation s'amortissent en un temps court, de l'ordre de l'inverse de la fréquence correspondant à la transition optique envisagée (c'est-à-dire 10^{-15} sec environ) alors que les effets qui nous intéressent correspondent à la durée de vie d'un niveau excité (de l'ordre de 10^{-9} à 10^{-7} sec). En tout état de cause, il est possible même de s'affranchir de cette restriction et de prendre comme état initial celui dans lequel un paquet d'onde correspondant à 1 photon excite les atomes de la vapeur (6, appendice n° 1). Quel que soit l'état initial, les équations (I,11) ne font plus intervenir que les amplitudes de probabilité $b_{e\beta}$ des états excités. Nous aurons à évaluer les intégrales du second membre, ce que nous pourrons faire en supposant que la solution est une somme d'exponentielles $e^{\rho t}$, avec $|\rho| \ll E_\beta, E_\alpha$; nous vérifierons ensuite que la solution obtenue satisfait bien à cette condition. Connaissant les $b_{e\beta}(t)$, l'équation (I,8) nous donnera, par multiplication par $< f, \alpha|$:

$$\frac{i\mathrm{d}}{\mathrm{d}t} b_{f\alpha} = \sum_{\beta} < f, \alpha\, |\mathcal{H}'_{\mathrm{I}}(t)|\, e, \beta > b_{e\beta}(t). \quad \text{(I,12)}$$

Nous obtiendrons ainsi toutes les valeurs cherchées $|a_{f\alpha}(t)|^2$ et nous pourrons étudier le rayonnement émis.

2. Cas de l'émission de rayonnement par un atome isolé. — Les résultats de cette étude sont bien connus ; nous allons brièvement reprendre le calcul par la méthode exposée au paragraphe 1, en supposant que l'atome est animé d'un mouvement rectiligne uniforme de vitesse $\boldsymbol{v}$, et se trouve éventuellement en présence s'un champ de radiofréquence.

A) Notations et conventions. — Nous supposons, comme nous l'avons dit plus haut que dans l'état fondamental le moment cinétique électronique vaut $J = 0$ et que le spin nucléaire est I ; l'énergie de l'état fondamental est prise comme zéro en l'absence de champ magnétique ; le sous-niveau Zeeman $|\mu >$, de nombre quantique magnétique μ, a l'énergie $\mu\omega_f$ dans un champ magnétique $\boldsymbol{H}_0$. Nous ne considérons que la transition vers un niveau hyperfin de moment cinétique total F de l'état excité. L'énergie de ce niveau sera désignée par k_0 en l'absence de champ magnétique et l'énergie Zeeman du sous-niveau $|m >$ de nombre quantique magnétique m, sera $m\omega_0$ dans le champ $\boldsymbol{H}_0$.

Lorsque l'atome est dans un état $|\mu >$, nous supposerons qu'un photon, caractérisé par un vecteur d'onde $\boldsymbol{k}$ et une direction de polarisation repérée par l'indice λ ($\lambda = 1$ ou 2), est présent. Les états sont ainsi désignés par $|\mu, \boldsymbol{k}, \lambda >$ et constituent un ensemble continu ; l'énergie de chacun est $k + \mu\omega_f$. Le champ de rayonnement est quantifié en ondes planes : dans un trièdre de référence Oxyz (Oz // $\boldsymbol{H}_0$), les vecteurs électriques $\boldsymbol{e}_1$ et $\boldsymbol{e}_2$ des ondes planes repérées par les indices 1 et 2, et dont le vecteur d'onde $\boldsymbol{k}$ a des angles polaires θ et φ, sont dans le plan ($\boldsymbol{k}$, Oz) et perpendiculaire à ce plan respectivement (fig. I,1).

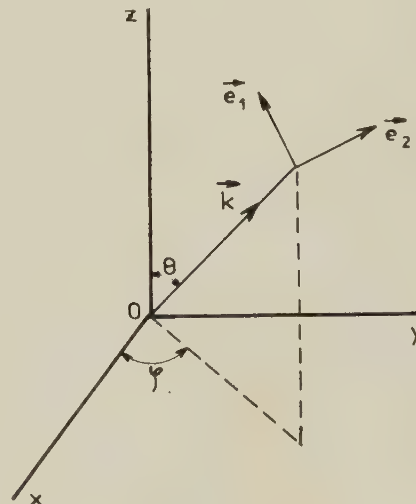


Fig. I,1.

Nous connaissons les éléments de matrice de $\mathcal{H}_0$ entre ces divers états puisque $\mathcal{H}_0$ représente leurs énergies ; il nous reste à connaître ceux de $\mathcal{H}_{\mathrm{I}}$. Pour un atome fixe, de dimensions négligeables devant la longueur d'onde optique du rayonnement, placé au point A tel que $\boldsymbol{OA} = \boldsymbol{R}$, on a (cf. réf. 9, p. 143 et 176).

$$< \mu, \boldsymbol{k}, \lambda\, |\mathcal{H}_{\mathrm{I}}|\, m > = A_k\, e^{-i\mathbf{k}.\mathbf{R}} < \mu\, |\boldsymbol{e}_\lambda.\boldsymbol{D}|\, m >. \quad \text{(I,13)}$$

A_k est une fonction de k, proportionnelle à $1/\sqrt{k}$, dont la valeur dépend des fonctions d'onde électroniques de l'atome.

$\boldsymbol{D}$ est un opérateur vectoriel hermitique sans dimensions, proportionnel au moment dipolaire électrique de l'atome ; dans le cas particulier

où $I = 0$ (et par suite $F = J = 1$) ses éléments de matrice sont [10]

$$\begin{cases} <\mu = 0\,|\boldsymbol{D}|\,m_J = \pm 1>_{I=0} = \mp \dfrac{\xi \pm i\eta}{\sqrt{2}} \\ <\mu = 0\,|\boldsymbol{D}|\,m_J = 0>_{I=0} = \zeta \end{cases} \quad (\text{I},14)$$

(ξ, η, ζ étant les vecteurs unitaires des axes).

Pour un isotope de spin nucléaire I, les fonctions d'onde $|m>$ du niveau hyperfin F sont :

$$|m> = \sum_{m_J=-1}^{+1} C_{1I}(F, m\,;\, m_J, m - m_J)\, \chi(m - m_J)|\,m_J>_{I=0} \quad (\text{I},15)$$

où — $|m_J>_{I=0}$ est la fonction d'onde en l'absence de spin nucléaire,

— $\chi(m_I)$ est la fonction d'onde de spin nucléaire correspondant à la valeur propre m_I de l'opérateur I_z,

— les $C_{1I}(F, m\,;\, m_J, m_I)$ sont des coefficients de Clebsch-Gordan (notation de Blatt et Weisskopf, *Theoretical Nuclear Physics*, p. 790).

On en déduit en général

$$<\mu\,|\boldsymbol{D}|\,m> = C_{1I}(F, m\,;\, m - \mu, \mu)\, <\mu = 0\,|\boldsymbol{D}|\,m_J = m - \mu>_{I=0}. \quad (\text{I},16)$$

Lorsque l'atome est mobile avec une vitesse $\boldsymbol{v}$ constante, faible devant celle de la lumière, nous négligerons tous les effets relativistes et nous admettrons en particulier que les éléments de matrice de $\mathcal{H}_I$ sont toujours donnés par (I,13), mais $\boldsymbol{R}$ étant maintenant variable avec le temps : $\boldsymbol{R} = \boldsymbol{R}_0 + \boldsymbol{v}t$. Il s'agit d'une approximation de type adiabatique consistant à prendre pour $\mathcal{H}_I$ à l'instant t la valeur qu'il aurait si l'atome occupait en permanence la position qu'il occupe à l'instant t. Nous négligeons également le recul de l'atome lors de l'émission ou de l'absorption d'un photon ; l'impulsion de ce dernier est environ 5.10^4 fois plus petite que celle d'un atome dont l'énergie cinétique est l'énergie thermique à la température ambiante.

B) Cas d'un atome isolé sans champ de radiofréquence. — Nous avons vu au paragraphe 1 que la résolution du problème conduit à évaluer les intégrales du second membre de (I,11) ce que nous ferons en supposant que la solution $b_m(t)$ est une combinaison linéaire d'exponentielles $e^{\rho t}$ où $|\rho| \ll k_0$.

Tenant compte de (I,6) et (I,13) on trouve pour un tel terme exponentiel

$$\int_0 <m\,|\mathcal{H}'_I(t)\,\mathcal{H}'_I(t')|\,m'>\,e^{\rho t'}\,dt' = \sum_{\mu,\mathbf{k},\lambda} |A_k|^2 <m\,|\boldsymbol{e}_\lambda.\boldsymbol{D}|\,\mu><\mu|\boldsymbol{e}_\lambda.\boldsymbol{D}|\,m'>\, e^{[i(m-m')\omega_0+\rho]t} \int_0^t e^{i[k_0+m'\omega_0-k-\mu\omega_f+\mathbf{k}.\mathbf{v}+i\rho](t-t')}\,dt'. \quad (\text{I},17)$$

Or lorsque $t \gg 1/x_0$ on sait que [9] :

$$\int_0^t e^{i(x_0-x)(t-t')}\,dt' = i\,\zeta(x_0 - x) \quad (\text{I},18)$$

où :

$$\zeta(x) = \lim_{\varepsilon \to 0} \frac{1}{x + i\varepsilon} = \mathcal{P}\frac{1}{x} - i\,\pi\delta(x). \quad (\text{I},19)$$

D'autre part, la sommation sur $\boldsymbol{k}$ doit être interprétée comme une intégration sur $\boldsymbol{k}$ [9] :

$$\sum_{\mathbf{k}} \to \int \rho(k)\,\sin\theta\,d\theta\,d\varphi\,dk \quad \text{avec} \quad \rho(k) = k^2/(2\pi)^3. \quad (\text{I},20)$$

D'où :

$$\int_0^t <m\,|\mathcal{H}'_I(t)\,\mathcal{H}'_I(t')|\,m'>\,e^{\rho t'}\,dt' = i\,e^{[i(m-m')\omega_0+\rho]t} \sum_{\lambda,\mu} \int \rho(k)\,\sin\theta\,d\theta\,d\varphi\,dk\,|A_k|^2\, \zeta(k_0 + m'\omega_0 - k - \mu\omega_f + \boldsymbol{k}.\boldsymbol{v} + i\rho) <m\,|\boldsymbol{e}_\lambda.\boldsymbol{D}|\,\mu><\mu\,|\boldsymbol{e}_\lambda.\boldsymbol{D}|\,m'>. \quad (\text{I},21)$$

La fonction ζ a sa singularité au voisinage de $k = k_0$, quantité très grande devant ω_0, ω_f (effet Zeeman), $\boldsymbol{k}.\boldsymbol{v}$ (effet Doppler) et $|\rho|$ (par hypothèse). $\rho(k)$ et $|A_k|^2$ varient très peu si k a une variation de l'ordre de ces quantités. On peut donc les négliger dans l'argument de la fonction ζ. Les sommations sur λ et μ et l'intégration sur les angles conduisent alors à $8\pi/3\ \delta_{mm'}$ (6, appendice n° 2) et il reste, en ajoutant tous les termes possibles en $e^{\rho t'}$ qui constituent $b_{m'}(t')$:

$$\int_0^t <m\,|\mathcal{H}'_I(t)\,\mathcal{H}'_I(t')|\,m'>\,b_{m'}(t')\,dt' = \delta_{mm'}\,b_{m'}(t')\left(\frac{\Gamma}{2} + i\,\Delta E\right) \quad (\text{I},22)$$

où

$$\begin{cases} \dfrac{\Gamma}{2} = \dfrac{8\pi^2}{3}\,\rho(k_0)\,|A_{k_0}|^2 \\ \Delta E = \dfrac{8\pi}{3}\displaystyle\int_0 \rho(k)\,|A_k|^2\,\mathcal{P}\,\frac{1}{k_0 - k}\,dk. \end{cases} \quad (\text{I},23)$$

Γ n'est autre que la somme sur $\boldsymbol{k}$, λ et μ des probabilités par unité de temps des transitions $|m> \to |\,\boldsymbol{k}, \lambda, \mu>$, obtenues en appliquant la théorie des perturbations dépendant du temps.

ΔE est une intégrale divergente, qui représente la self-énergie de l'état excité de l'atome en présence du champ de rayonnement. Après élimination de la partie divergente, ΔE est une petite correction à l'énergie k_0.

On posera par la suite

$$\tilde{k}_0 = k_0 + \Delta E. \quad (\text{I},24)$$

On a donc, d'après (I,11) et (I,22), en supposant que l'état initial est un état excité, comme il a été expliqué au paragraphe 1 :

$$\frac{d}{dt}\,b_m(t) = -\left(\frac{\Gamma}{2} + i\,\Delta E\right) b_m(t) \quad (\text{I},25)$$

et

$$b_m(t) = b_m(0)\, e^{-\left(\frac{\Gamma}{2}+i\Delta E\right)t}. \qquad (I,26)$$

Le résultat est bien une exponentielle $e^{\rho t}$, telle que $|\rho| \ll k_0$, ce qui justifie le calcul fait plus haut. L'interprétation physique de ce résultat est évidente : la probabilité $|b_m(t)|^2 = |b_m(0)|^2\, e^{-\Gamma t}$ de trouver l'atome dans l'état excité $|m>$ décroît exponentiellement avec une constante de temps $\tau = 1/\Gamma$, durée de vie de l'état excité, la même pour tous les sous-niveaux Zeeman. De même, tous les sous-niveaux Zeeman ont la même self-énergie ΔE. Ces résultats sont les mêmes, quelle que soit la vitesse de l'atome, ce qui est *a priori* évident avec nos hypothèses non relativistes. Enfin, si l'atome est à l'instant initial dans un état $|m_0>$ déterminé, $b_m(0) = \delta_{mm_0}$ et $|b_m(t)|^2 = \delta_{mm_0} e^{-\Gamma t}$, c'est-à-dire qu'il n'y a pas de transitions vers les autres sous-niveaux Zeeman, résultat également évident.

On peut alors utiliser l'équation (I,12) pour calculer $b_{\mu,\mathbf{k},\lambda}(t)$. On obtient en particulier dans le cas où $b_m(0) = \delta_{mm_0}$:

$$|b_{\mu,\mathbf{k},\lambda}(t=\infty)|^2 = |A_k|^2 \frac{|<\mu\,|\boldsymbol{e}_\lambda.\boldsymbol{D}|\,m_0>|^2}{(k+\mu\omega_f-\tilde{k}_0-m_0\,\omega_0-\boldsymbol{k}.\boldsymbol{v})^2+\frac{\Gamma^2}{4}}.$$

On retrouve ainsi le résultat classique selon lequel la raie optique émise est une forme de Lorentz, déplacée par effet Doppler (terme $\boldsymbol{k}.\boldsymbol{v}$ du dénominateur), de largeur à mi-hauteur Γ (largeur naturelle du niveau excité).

C) Cas d'un atome isolé en présence d'un champ de radiofréquence. — Nous supposerons qu'il s'agit d'un champ magnétique $\boldsymbol{H}_1$ tournant à la vitesse angulaire ω dans le plan xOy. Avec les conventions indiquées au paragraphe 1 (ne tenir compte que des transitions possibles entre les sous-niveaux $|m>$), l'Hamiltonien contient un terme supplémentaire $\mathcal{H}_{RF}$.

$$\mathcal{H}_{RF} = \frac{\gamma H_1}{2}\,[e^{-i\omega t} F_+ + e^{+i\omega t} F_-] \qquad (I,27)$$

où l'on a posé : $F_\pm = F_x \pm iF_y$ ($\boldsymbol{F}$ = moment cinétique du niveau excité, γ = son rapport gyromagnétique). On a donc :

$$< m'\,|\mathcal{H}_{RF}|\,m > = K_{m'm}[\delta_{m',m+1}\, e^{-i\omega t} + \delta_{m',m-1}\, e^{i\omega t}]. \qquad (I.28)$$

L'équation de Schrödinger s'écrit :

$$i\frac{d}{dt}\Psi(t) = [\mathcal{H}_0 + \mathcal{H}_I(t) + \mathcal{H}_{RF}(t)]\,\Psi(t).$$

Soit en utilisant le développement

$$\Psi = \sum_{\mu,\mathbf{k},\lambda} a_{\mu,\mathbf{k},\lambda}(t)\,|\mu,\boldsymbol{k},\lambda> + \sum_m a_m(t)|\,m>:$$

$$\begin{cases} \frac{id}{dt} a_m = (k_0 + m\,\omega_0)\, a_m \\ \quad + \sum_{\mu,\mathbf{k},\lambda} < m\,|\mathcal{H}_I(t)|\,\mu,\boldsymbol{k},\lambda > a_{\mu,\mathbf{k},\lambda} \\ \quad + \sum_{m'=m\pm1} K_{mm'}\, e^{-i(m-m')\omega t}\, a_{m'} \\ \frac{id}{dt} a_{\mu,\mathbf{k},\lambda} = (k + \mu\omega_f)\, a_{\mu,\mathbf{k},\lambda} \\ \quad + \sum_m < \mu,\boldsymbol{k},\lambda\,|\mathcal{H}_I(t)|\,m > a_m. \end{cases} \qquad (I,29)$$

Pour se ramener au problème précédent, il faut éliminer le couplage entre les divers coefficients a_m. Pour cela, on effectue le changement de variables qui correspond au passage dans un référentiel tournant à la vitesse angulaire ω [11] :

$$a_m = a'_m\, e^{-im\omega t}$$

(I,29) devient :

$$\begin{cases} \frac{id}{dt} a'_m = [k_0 + m(\omega_0 - \omega)]\, a'_m + \sum_{\mu,\mathbf{k},\lambda} e^{im\omega t} \\ \quad < m\,|\mathcal{H}_I(t)|\,\mu,\boldsymbol{k},\lambda > a_{\mu,\mathbf{k},\lambda} + \sum_{m'=m\pm1} K_{mm'}\, a'_{mm'} \\ \frac{id}{dt} a_{\mu,\mathbf{k},\lambda} = (k + \mu\omega_f)\, a_{\mu,\mathbf{k},\lambda} \\ \quad + \sum_m < \mu,\boldsymbol{k},\lambda\,|\mathcal{H}_I(t)|\,m > e^{-im\omega t}\, a'_m. \end{cases} \qquad (I,30)$$

La matrice à $2F+1$ lignes et $2F+1$ colonnes

$$\mathcal{H} = (\omega_0 - \omega)F_z + \gamma H_1 F_x \qquad (I,31)$$

(dont les éléments de matrices non diagonaux entre $|m>$ et $|m'>$ sont précisément les $K_{mm'}$) peut être diagonalisée au moyen d'une transformation unitaire (qui correspond à la quantification sur l'axe du champ effectif dans le référentiel tournant). On appellera $|M>$ ses états propres, correspondant à la valeur propre M de la projection de $\boldsymbol{F}$ sur l'axe du champ effectif, et à la valeur propre $M\varepsilon$ de la matrice

$$(\varepsilon = \sqrt{(\omega_0-\omega)^2 + (\gamma H_1)^2}).$$

$< m|M >$ sera l'élément de matrice de la transformation unitaire. On pose donc

$$\begin{cases} |m> = \sum_M < M|m>|M> \\ |M> = \sum_m < m|M>|m> \\ a''_M = \sum_m < M|m> a'_m \\ a'_m = \sum_M < m|M> a''_M \end{cases} \qquad (I,32)$$

avec

$$\begin{cases} \sum_m < M|m> < m|M'> = \delta_{MM'} \\ \sum_M < m|M> < M|m'> = \delta_{mm'}. \end{cases}$$

On est ainsi conduit au système

$$\left\{\begin{aligned} \frac{i\mathrm{d}}{\mathrm{d}t}\, a''_M &= (k_0 + M\,\varepsilon)\, a''_M \\ &+ \sum_{\substack{m\\ \mu,\mathbf{k},\lambda}} < M|m > \mathrm{e}^{im\omega t} < m\,|\mathcal{H}_{\mathrm{I}}(t)|\,\mu, \boldsymbol{k}, \lambda > a_{\mu,\mathbf{k},\lambda} \\ \frac{i\mathrm{d}}{\mathrm{d}t}\, a_{\mu,\mathbf{k},\lambda} &= (k + \mu\,\omega_f)\, a_{\mu,\mathbf{k},\lambda} \\ &+ \sum_{mM} < \mu, \boldsymbol{k}, \lambda\,|\mathcal{H}_{\mathrm{I}}(t)|\, m > \mathrm{e}^{-im\omega t} < m|M > a''_M. \end{aligned}\right. \tag{I,33}$$

Ainsi on se trouve ramené à un problème dans lequel les états excités ne sont pas couplés directement entre eux. On passe dans la représentation d'interaction correspondant à ce problème (cf. paragraphe 1).

$$\left\{\begin{aligned} b_M &= \mathrm{e}^{i(k_0+M\varepsilon)t}\, a''_M \\ b_{\mu,\mathbf{k},\lambda} &= \mathrm{e}^{i(k+\mu\omega_f)t}\, a_{\mu,\mathbf{k},\lambda}. \end{aligned}\right. \tag{I,34}$$

L'opérateur $\mathcal{H}_{\mathrm{I}}^{T}(t)$ d'éléments de matrice

$$< \mu, \boldsymbol{k}, \lambda\,|\mathcal{H}_{\mathrm{I}}^{T}(t)|\, M > = \sum_{m} < \mu, \boldsymbol{k}, \lambda\,|\mathcal{H}_{\mathrm{I}}(t)|\, m > \mathrm{e}^{-im\omega t} < m|M > \tag{I,35}$$

joue maintenant le rôle de $\mathcal{H}_{\mathrm{I}}(t)$ dans le calcul précédent.

On aura à calculer des intégrales du type (I,17) ; ε et ω étant, comme ω_0, négligeables devant k_0, on trouve :

$$\begin{aligned} \int_0^t \sum_{\mu,\mathbf{k},\lambda} &< M\,|\mathcal{H}_{\mathrm{I}}^{T'}(t)|\,\mu, \boldsymbol{k}, \lambda > \\ &< \mu, \boldsymbol{k}, \lambda\,|\mathcal{H}_{\mathrm{I}}^{T'}(t')|\, M' > b_{M'}(t')\mathrm{d}t' \\ &= \sum_{mm'} < M|m > \mathrm{e}^{i(m-m')\omega t} \\ &< m'|M' > \delta_{mm'} \left(\frac{\Gamma}{2} + i\,\Delta E\right) b_{M'}(t) \\ &= \delta_{MM'} \left(\frac{\Gamma}{2} + i\,\Delta E\right) b_M(t). \end{aligned} \tag{I,36}$$

D'où la solution :

$$\begin{aligned} a''_M &= \mathrm{e}^{-i\left(\tilde{k}_0 + M\varepsilon - i\frac{\Gamma}{2}\right)t}\, a''_M(0) \\ &= \mathrm{e}^{-i\left(\tilde{k}_0 - i\frac{\Gamma}{2}\right)t} \sum_{m} < M|m > \mathrm{e}^{-iM\varepsilon t}\, a'_{m'}(0) \end{aligned}$$

et

$$\begin{aligned} a'_m(t) &= \mathrm{e}^{-i\left(\tilde{k}_0 - i\frac{\Gamma}{2}\right)t} \sum_{Mm'} < m|M > \mathrm{e}^{-iM\varepsilon t} < M|m' > a'_{m'}(0) \\ &= \mathrm{e}^{-i\left(\tilde{k}_0 - i\frac{\Gamma}{2}\right)t} \sum_{m'} < m\,|\mathrm{e}^{-i\mathcal{H}t}|\, m' > a'_{m'}(0). \end{aligned}$$

Ainsi les $a'_m(t)$ sont les éléments d'un vecteur A à $2F + 1$ éléments, dont l'évolution dans le temps satisfait à

$$\frac{i\mathrm{d}}{\mathrm{d}t} A = \left(\tilde{k}_0 - i\frac{\Gamma}{2} + \mathcal{H}\right) A. \tag{I,37}$$

Tout se passe donc pour l'évolution dans le temps des a'_m comme si $\mathcal{H}_{\mathrm{I}}(t)$ n'existait pas mais k_0 étant remplacé par $\tilde{k}_0 - i\dfrac{\Gamma}{2}$, dont le terme imaginaire provoque une décroissance exponentielle des probabilités $|a'_m(t)|^2 = |a_m(t)|^2$. Les valeurs de

$$|< m|\,\mathrm{e}^{-i\mathcal{H}t}\,|m' >|^2$$

ne sont autres que les $P(F, m', m\,;\, t)$ définis par Brossel [2].

Par suite, la probabilité de trouver un atome dans l'état m' à l'instant t, sachant qu'il était dans l'état m à l'instant 0, est $\mathrm{e}^{-\Gamma t}\, P(F, m, m'\,;\, t)$; ceci justifie le résultat obtenu par Brossel pour la détermination des populations des niveaux lorsque l'on a affaire à une assemblée d'atomes suffisamment éloignés les uns des autres pour que les effets de la diffusion multiple soient négligeables.

3. **Cas d'un système de 2 atomes.** — A) Notations. — Les 2 atomes de vitesse $\boldsymbol{v}_1$ et $\boldsymbol{v}_2$ sont situés aux distances $\boldsymbol{R}_1$ et $\boldsymbol{R}_2$ de l'origine à l'instant $t = 0$. Les états du système seront désignés par :

— $|1\mu_1, 2m_2 >$
- — Atome 1 dans le sous-niveau Zeeman μ_1 de l'état fondamental.
- — Atome 2 dans le sous-niveau Zeeman m_2 de l'état excité.

— $|1m_1, 2\mu_2 >$
- — Atome 1 dans le sous-niveau Zeeman m_1 de l'état excité.
- — Atome 2 dans le sous-niveau Zeeman μ_2 de l'état fondamental.

— $|1\mu_1, 2\mu_2, \boldsymbol{k}, \lambda >$
- — Atomes 1 et 2 dans les sous-niveaux Zeeman μ_1 et μ_2 de l'état fondamental.
- — Présence d'un photon de vecteur d'onde $\boldsymbol{k}$ caractérisé par la polarisation λ.

Les énergies de ces 3 types d'états sont respectivement $\mu_1\,\omega_f + k_0 + m_2\,\omega_0$, $k_0 + m_1\,\omega_0 + \mu_2\,\omega_f$ $\mu_1\,\omega_f + \mu_2\,\omega_f + k$.

B) Calcul des intégrales (I,11). — Nous supposons toujours pour les évaluer que les $b(t)$ sont des combinaisons linéaires d'exponentielles $\mathrm{e}^{\rho t}$, où $|\rho| \ll k_0$, en vérifiant *a posteriori* l'exactitude de cette hypothèse.

Les intégrales étudiées sont de deux types. Pour le 1er type, les deux états excités qui interviennent correspondent à l'excitation du même atome. Elles valent évidemment :

$$\left\{\begin{aligned} \int_0^t &< 1\mu_1, 2m_2|\,\mathcal{H}'_{\mathrm{I}}(t)\,\mathcal{H}'_{\mathrm{I}}(t')|\,1\mu'_1, 2m'_2 > b_{1\mu'_1,2m'_2}(t')\,\mathrm{d}t' \\ &= \left(\frac{\Gamma}{2} + i\,\Delta E\right) \delta_{\mu_1\mu'_1}\,\delta_{m_2m'_2}\, b_{1\mu_1 2m_2}(t) \\ \int_0^t &< 1m_1, 2\mu_2\,|\mathcal{H}'_{\mathrm{I}}(t)\,\mathcal{H}'_{\mathrm{I}}(t')|\,1m'_1, 2\mu'_2 > b_{1m'_1,2\mu'_2}(t')\,\mathrm{d}t' \\ &= \left(\frac{\Gamma}{2} + i\,\Delta F\right) \delta_{\mu_2\mu'_2}\,\delta_{m_1m'_1} b_{1m_1,2\mu_2}(t). \end{aligned}\right. \tag{I,38}$$

La 2e catégorie d'intégrales comporte celles du type

$$\int_0^t < 1\mu_1, 2m_2|\, \mathcal{H}'_{\rm I}(t)\, \mathcal{H}'_{\rm I}(t')\,| 1m_1, 2\mu_2 > e^{\rho t'}\, dt'$$

$$= \sum_{\mathbf{k},\lambda} \int_0^t dt'\, |A_k|^2\, e^{i\mathbf{k}.[\mathbf{R}_2 - \mathbf{R}_1 + \mathbf{v}_2 t - \mathbf{v}_1 t']}$$

$$< m_2\, |\boldsymbol{e}_\lambda . \boldsymbol{D}|\, \mu_2 > < \mu_1\, |\boldsymbol{e}_\lambda . \boldsymbol{D}|\, m_1 >$$

$$e^{i[(m_2 - m_1)\omega_0 + (\mu_1 - \mu_2)\omega_f]t}\, e^{i[k_0 + m_1\omega_0 - k - \mu_1\omega_f](t-t')}\, e^{\rho t'}\, dt'.$$

Nous commencerons par effectuer l'intégration sur les angles polaires de $\boldsymbol{k}$ et la sommation sur λ, en posant

$$\begin{cases} \Delta \boldsymbol{R} = (\boldsymbol{R}_2 + \boldsymbol{v}_2\, t) - (\boldsymbol{R}_1 + \boldsymbol{v}_1\, t') \\ \sum\limits_\lambda < m_2\, |\boldsymbol{e}_\lambda . \boldsymbol{D}|\, \mu_2 > < \mu_1\, |\boldsymbol{e}_\lambda . \boldsymbol{D}| m_1 > \\ \qquad = f(\theta, \varphi) = g(\theta', \varphi'\,;\, \Theta, \Phi) \end{cases}$$

θ' et φ' sont les angles polaires de $\boldsymbol{k}$ dans un système d'axes Ox'y'z' dont l'axe Oz' est porté par $\Delta\boldsymbol{R}$ (d'angles polaires Θ et Φ dans l'ancien système Oxyz). On trouve

$$\int \sin\theta'\, d\theta'\, d\varphi'\, e^{ik\Delta R \cos\theta'}\, g(\theta', \varphi'\,;\, \Theta, \Phi)$$

$$= \frac{1}{ik\,\Delta R} \int d\varphi' [e^{ik\Delta R}\, g(\theta' = 0,\ \varphi'\,;\, \Theta, \Phi)$$

$$- e^{-ik\Delta R}\, g(\theta' = \pi,\ \varphi'\,;\, \Theta, \Phi)] + \text{termes en } \frac{1}{(k\,\Delta R)^2}.$$

Nous ne garderons que le 1er terme, moyennant l'hypothèse que $k_0\,\Delta R \ll 1$ (I,39), c'est-à-dire que la distance des atomes est supposée grande devant la longueur d'onde du rayonnement optique (notons en effet que les seules valeurs de k importantes sont voisines de k_0). Il est clair d'autre part que $g(\theta' = 0 \text{ ou } \pi,\ \varphi'\,;\, \Theta, \Phi)$ ne doit plus dépendre de φ' et se réduit à $f(\Theta, \Phi)$ ou $f(\pi - \Theta, \pi + \Phi)$; ces deux valeurs sont d'ailleurs égales, car $f(\theta, \varphi)$ ne dépend que de la direction de $\boldsymbol{k}$ et non de son sens. L'intégrale cherchée vaut donc avec ces approximations :

$$-\, 2\pi\, i\, e^{i[(m_2 - m_1)\omega_0 + (\mu_1 - \mu_2)\omega_f - i\rho]t}$$

$$\int^\infty \rho(k)\, dk\, |A_k|^2 \int_0^t dt'\, f(\Theta, \Phi)\, \times$$

$$\frac{e^{ik\Delta R} - e^{-ik\Delta R}}{k\,\Delta R}\, e^{i[k_0 + m_1\omega_0 - k - \mu_1\omega_f + i\rho](t-t')}.$$

$\dfrac{\rho(k)\, |A_k|^2}{k\,\Delta R}$ est une fonction de k beaucoup plus lentement variable que les exponentielles, contenant k. Pour une variable u quelconque, lorsque $k'u \gg 1$, nous écrirons

$$\int_0^\infty \rho(k)\, |A_k|^2\, e^{i(k'-k)u}\, \frac{e^{ik\Delta R} - e^{-ik\Delta R}}{k\,\Delta R}\, dk$$

$$\sim \frac{\rho(k')\, |A_{k'}|^2}{k'\,\Delta R} \Big\{ e^{ik'\Delta R} \int_{-\infty}^{+\infty} e^{i(k'-k)(u-\Delta R)}\, dk - e^{-ik'\Delta R} \int_{-\infty}^{+\infty} e^{i(k'-k)(u+\Delta R)}\, dk \Big\}$$

$$\sim \frac{2\pi\rho(k')\, |A_{k'}|^2}{k'\,\Delta R} \{ e^{ik'\Delta R}\, \delta(u - \Delta R) - e^{-ik'\Delta R}\, \delta(u - \Delta R) \}.$$

L'intégrale sur t qui reste à effectuer comporte donc deux fonctions $\delta(t - t' \pm \Delta R)$. Nous supposerons les atomes assez proches pour que, aux valeurs de t intéressantes ($t \sim 1/\Gamma$), $\Delta R \ll t$ (I,40) (c'est-à-dire que le temps de parcours de la lumière, de vitesse $c = 1$, d'un atome à l'autre est petit devant $\tau = 1/\Gamma$).

Posons $\boldsymbol{R}_{12} = \boldsymbol{R}_2 - \boldsymbol{R}_1$, $\boldsymbol{v}_{12} = \boldsymbol{v}_2 - \boldsymbol{v}_1$

$$a_{12} = k_0\, \frac{\boldsymbol{v}_{12} . \boldsymbol{R}_{12}}{R_{12}} \tag{I,41}$$

(produit par k_0 de la projection de $\boldsymbol{v}_{12}$ sur $\boldsymbol{R}_{12}$).

Nous supposerons aussi que

$$|\boldsymbol{v}_{12}\, t| \ll |\boldsymbol{R}_{12}| \tag{I,42}$$

c'est-à-dire que ΔR varie peu pendant le temps t. On peut alors négliger la variation de ΔR, Θ et Φ avec le temps sauf dans les termes du type $k_0\,\Delta R$ des exponentielles ($k_0\,\Delta R$ étant très supérieur à 1 d'après (I,39), la condition (I,40) n'implique pas que $|a_{12}\, t|$ soit très inférieur à 1). Tenant compte de (I,23), il vient finalement :

$$-\frac{3}{4}\, \frac{i\Gamma\, e^{i(k_0 + m_1\omega_0 - \mu_1\omega_f)R_{12}}}{(k_0 + m_1\,\omega_0 - \mu_1\,\omega_f + i\,\rho)\, R_{12}}$$

$$\Big[\sum_\lambda < m_2\, |\boldsymbol{u}_\lambda . \boldsymbol{D}|\, \mu_2 > < \mu_1\, |\boldsymbol{u}_\lambda . \boldsymbol{D}|\, m_1 > \Big]$$

$$\times\, e^{i[(m_2 - m_1)\omega_0 + (\mu_1 - \mu_2)\omega_f]t}\, e^{\rho(t - R_{12})}\, e^{ia_{12}}$$

formule dans laquelle $\boldsymbol{u}_\lambda$ est la position que prend $\boldsymbol{e}_\lambda$ lorsque $\boldsymbol{k}$ a la direction et le sens de $\boldsymbol{R}_{12}$, et dans laquelle on a utilisé le développement :

$$\Delta R = R_{12} + \frac{a_{12}\, t}{k_0} + \ldots$$

Supposant enfin $\omega_0\, R_{12}$, $\omega_f\, R_{12}$, $|\rho\, R_{12}| \ll 1$ (distance entre atomes très petite devant les longueurs d'onde associées aux effets Zeeman et à la variation dans le temps des amplitudes b), on obtient :

$$\int_0^t < 1\mu_1, 2m_2 | \mathcal{H}'_{\rm I}(t)\, \mathcal{H}'_{\rm I}(t') | 1m_1, 2\mu_2 > b_{1m_1, 2\mu_2}(t')\, dt'$$

$$= -\, \Gamma(1\mu_1, 2m_2\,;\, 1m_1, 2\mu_2\,;\, t)\, e^{ia_{12}t}\, b_{1m_1, 2\mu_2}(t) \tag{I,43}$$

en posant

$$\Gamma(1\mu_1, 2m_2\,;\, 1m_1, 2\mu_2\,;\, t)$$

$$= \frac{3}{4}\, i\, \Gamma\, \frac{e^{ik_0 R_{12}}}{k_0\, R_{12}}\, e^{i[(m_2 - m_1)\omega_0 + (\mu_1 - \mu_2)\omega_f]t}$$

$$\times \sum_\lambda < m_2\, |\boldsymbol{u}_\lambda . \boldsymbol{D}|\, \mu_2 > < \mu_1\, |\boldsymbol{u}_\lambda . \boldsymbol{D}|\, m_1 >. \tag{I,44}$$

Il en résulte que les équations d'évolution des coefficients b sont couplées entre elles ; ainsi, d'après (I,11) et (I,43)

$$\frac{d}{dt}\, b_{1\mu_1, 2m_2} = -\left(\frac{\Gamma}{2} + i\,\Delta E\right) b_{1\mu_1, 2m_2}$$

$$+ \sum_{m_1\mu_2} \Gamma(1\mu_1, 2m_2\,;\, 1m_1, 2\mu_2\,;\, t)\, e^{ia_{12}t}\, b_{1m_1, 2\mu_2}. \tag{I,45}$$

Le terme de couplage décroît avec R_{12} comme $\frac{1}{k_0 R_{12}}$, ce qui conduit à une probabilité de passage du photon d'un atome à un autre en $\frac{1}{(k_0 R_{12})^2}$; ceci était prévisible : l'énergie émise par un atome se répartit sur une sphère et l'autre atome a une section efficace pour son photon de résonance dont le diamètre est de l'ordre de la longueur d'onde du rayonnement $\Lambda = 2\pi/k_0$. Le facteur Γ a d'ailleurs une dépendance angulaire, qui est celle que l'on peut déduire de l'image classique représentant les atomes comme des oscillateurs : il varie comme le produit scalaire des projections de $< m_2 |\boldsymbol{D}| \mu_2 >$ et $< \mu_1 |\boldsymbol{D}| m_1 >$ sur un plan perpendiculaire à R_{12}. Le facteur exponentiel $e^{i[(m_2 - m_1)\omega_0 + (\mu_1 - \mu_2)\omega_f]t}$ correspond à la différence d'énergie entre les états $| 1\mu_1, 2m_2 >$ et $|1m_1, 2\mu_2 >$ et le facteur $e^{ia_{12}t}$ traduit le décalage en fréquence dû à l'effet Doppler des photons de résonance émis par l'atome 1 et absorbés par l'atome 2. Le facteur $e^{ik_0 R_{12}}$ contenu dans

$$\Gamma(1\mu_1, 2m_2 ; 1m_1, 2\mu_2 ; t)$$

correspond enfin au déphasage de l'onde lumineuse sur le trajet $\boldsymbol{R}_{12}$. L'effet de retard dans la propagation de l'onde est encore contenu dans le facteur $e^{\rho(t - R_{12})}$ (formule (I,42)), mais il a été ensuite négligé d'après l'hypothèse $|\rho R_{12}| \ll 1$.

Notons enfin qu'une résolution de (I,45) par un développement en puissance de $\frac{1}{k_0 R_{12}}$, c'est-à-dire en considérant le couplage comme une perturbation, conduira bien à une solution en somme d'exponentielles $e^{\rho t}$ satisfaisant à la condition $|\rho| \ll k_0$.

C) Cas où il existe un champ de radiofréquence. — On effectue alors des changements de variables du type (I,32) qui sont les mêmes pour les 2 types d'états $|1\mu_1, 2m_2 >$ et $|1m_1, 2\mu_2 >$, puisque la radiofréquence agit de façon identique sur l'état excité de chaque atome en donnant les mêmes éléments de matrice. On obtient ainsi les équations

$$\frac{i\mathrm{d}}{\mathrm{d}t} a'_{1\mu_1,2m_2} = \left[\tilde{k}_0 - i\frac{\Gamma}{2} + m_2(\omega_0 - \omega)\right] a'_{1\mu_1,2m_2}$$
$$\sum_{m'_2 = m_2 \pm 1} K_{m_2 m'_2} a'_{1\mu_1,2m'_2}$$
$$+ i \sum \Gamma(1\mu_1, 2m_2 ; 1m_1, 2\mu_2 ; t)$$
$$e^{ia_{12}t} e^{i(m_2 - m_1)(\omega - \omega_0)t} a'_{1m_1,2\mu_2}. \quad (I,46)$$

On a posé

$$a'_{1\mu_1,2m_2} = e^{i(m_2\omega + \mu_1\omega_f)t} a_{1\mu_1,2m_2}.$$

Ainsi le champ de radiofréquence ne modifie pas la nature du couplage entre les états excités des 2 atomes. On peut alors, pour une valeur déterminée de μ_1 (ou μ_2) former avec les $2F + 1$ coefficients $a'_{1\mu_1,2m_2}$ (ou $a'_{1m_1,2\mu_2}$) un vecteur à $2F + 1$ composantes, désigné par $A(1\mu_1, 2)$ (ou $A(1, 2\mu_2)$). Les coefficients

$$\Gamma(1\mu_1, 2m_2 ; 1m_1, 2\mu_2 ; t) e^{i(m_2 - m_1)(\omega - \omega_0)t}$$

forment une matrice de rang $2F + 1$ pour μ_1 et μ_2 fixés, $C(1\mu_1, 2\mu_2 ; t)$ et les équations d'évolution des vecteurs A sont du type :

$$\frac{i\mathrm{d}}{\mathrm{d}t} A(1\mu_1, 2) = \left(\tilde{k}_0 - i\frac{\Gamma}{2} + \mathcal{H}\right) A(1\mu_1, 2)$$
$$+ i \sum_{\mu_2} C(1\mu_1, 2\mu_2 ; t) e^{ia_{12}t} A(1, 2\mu_2) \quad (I,47)$$

où $\mathcal{H}$ est la matrice de rang $2F + 1$:

$$\mathcal{H} = (\omega_0 - \omega) F_z + \gamma H_1 F_x.$$

D'après la formule (I,44) on peut écrire C sous la forme :

$$C(1\mu_1, 2\mu_2 ; t) = \frac{3}{4} i \Gamma \frac{e^{ik_0 R_{12}}}{k_0 R_{12}}$$
$$\sum_\lambda e^{iF_z\omega t}(\boldsymbol{u}_\lambda . \boldsymbol{D}) e^{-iI_z\omega_f t} |\mu_2 > < \mu_1| e^{iI_z\omega_f t}(\boldsymbol{u}_\lambda . \boldsymbol{D}) e^{-iF_z\omega t}. \quad (I,48)$$

Notons que l'équation (I,47) est valable en l'absence de champ de radiofréquence (il suffit de faire $\omega = 0$ et $\gamma H_1 = 0$).

Manuscrit reçu le 20 février 1959.

BIBLIOGRAPHIE

[1] Brossel (J.) et Kastler (A.), *C. R. Acad. Sc.*, 1949, **229**, 1213.

[2] Bitter (F.) et Brossel (J.), *Phys. Rev.*, 1952, **86**, 308. Brossel (J.), *Thèse*, Paris, 1952 ; *Ann. Physique*, 1952, **7**, 622.

[3] Blamont (J. E.), *Thèse*, Paris, 1957 ; *Ann. Physique*, 1957, **2**, 551.

[4] Guiochon (M. A.), Blamont (J. E.) et Brossel (J.), *C. R. Acad. Sc.*, 1956, **243**, 1859 ; *J. Physique Rad.*, 1957, **18**, 99.

[5] Rollet (N.), Diplôme d'Études Supérieures, Paris, 1955. Rollet (N.), Brossel (J.) et Kastler (A.), *C. R. Acad. Sc.*, 1956, **242**, 240. Guiochon (M. A.), Diplôme d'Études Supérieures, Paris, 1956. Boutron (F.), Diplôme d'Études Supérieures, Paris, 1957. Barrat (J. P.), *C. R. Acad. Sc.*, 1957, **244**, 2785. Boutron (F.), Barrat (J. P.) et Brossel (J.), *C. R. Acad. Sc.*, 1957, **245**, 2250. Barrat (J. P.) et Brossel (J.), *C. R. Acad. Sc.*, 1958, **246**, 2744. Barrat (J. P.), *J. Physique Rad.*, 1958, **19**, 858.

[6] Barrat (J. P.), *Thèse*, Paris, 1959, n° de microfilm C. N. R. S. 38 808.

[7] Weisskopf (V.), *Ann. Physik*, 1931, **9**, 23. Breit (G.), *Rev. Mod. Physics*, 1933, **5**, 91.

[8] Dyson (F. J.), " Advanced Quantum Mechanics ", Cours professé à l'Université Cornell.

[9] Heitler (W.), " The Quantum Theory of Radiation ", 3e édition.

[10] Voir Condon (E. U.) et Shortley (G. H.), " The Theory of Atomic Spectra ".

[11] Ramsey (N. F.), " Molecular Beams ", p. 146.

SPALLATION (1) DU TERBIUM PAR DES PROTONS DE 170 MEV. PREMIÈRE PARTIE QUALITATIVE

Par J. OLKOWSKY, M. LE PAPE, I. GRATOT et L. COHEN,
S. R. N. M. E., C. E. N., Saclay.

Résumé. — Les produits de la réaction Tb + p (170 MeV) ont été étudiés par des méthodes radiochimiques. Pour chaque élément, les rayonnements α, β, γ, X ont été étudiés et les résultats comparés aux données de la littérature. Les sections efficaces seront données dans un travail ultérieur.

Nous observons un nouvel émetteur alpha du gadolinium de période 7 heures, avec des raies gamma : X (43 keV), 220 keV, 340 keV, 550 keV, 720 keV.

De nouvelles raies gamma sont données :

^{155}Tb : 480 keV, 880 keV.
^{147}Eu : 570 keV.
^{146}Eu (38 h) : 125 keV, 570 keV.
^{145}Eu : 180 keV.

Abstract. — The products of the reaction Tb + $p_{170\ MeV}$ have been studied by radiochemical methods. For each element, α, β, γ, and X rays have been studied and results compared to literature data. The cross sections will be given in a further work.

We observe a new alpha emitter of gadolinium, half-life 7 h, with the following γ-rays : X (43 keV), 220 keV, 340 keV, 550 keV, 720 keV.

New γ-rays are given :

^{155}Tb : 480 keV ; 880 keV.
^{147}Eu : 570 keV.
^{146}Eu (38 h) : 125 keV ; 570 keV.
^{145}Eu : 180 keV.

L'étude de la spallation par protons de grande énergie à partir des produits résiduels de la réaction a été jusqu'à présent faite surtout sur des noyaux de masses moyennes [1] ou très lourdes [2]. Quelques travaux concernent la région comprise entre le lanthane et le plomb mais ne s'intéressent qu'à la formation de certains isotopes [3, 4].

Notre choix d'étude de la spallation s'est porté sur le terbium pour plusieurs raisons : 1) c'est un mono-isotope ; 2) les isotopes très déficients en neutrons de cette région ont des périodes très convenables au point de vue expérimental ; 3) cette région de la table des éléments comporte encore de nombreux isotopes inconnus. Nous espérions en former et en étudier quelques-uns, en particulier émetteurs alpha.

I. Méthodes expérimentales. — A) Irradiations. — Les cibles, constituées par de l'oxyde de terbium très pur (Johnson-Matthey), étaient irradiées au synchrocyclotron d'Uppsala en Suède. La durée des irradiations était variable mais de l'ordre de quelques heures. Les cibles étaient bombardées à l'intérieur de la machine au maximum d'énergie du faisceau soit 170 MeV. Ces cibles, aussitôt après irradiation, nous parvenaient par avion. La séparation chromatographique des différents éléments commençait environ 12 heures après la fin de l'irradiation. Nous n'avons donc pas, dans le présent travail, de résultats concernant les isotopes de période inférieure à 3 heures.

B) Séparation chromatographique des éléments formés. — Le terbium sous forme de Tb_2O_3, enfermé dans une mince enveloppe d'aluminium pour l'irradiation, est attaqué par un mélange chlorhydrique-nitrique. Les hydroxydes de terres rares sont dissous dans l'acide chlorhydrique 1/5. La séparation des terres rares entre elles s'effectue par la méthode chromatographique sur colonne de résine (Dowex 50) échangeuse d'ions [5].

C) Étude des émetteurs alpha. — Chaque élément est étudié dans une chambre d'ionisation [6] qui avait été construite à cet effet. Son mouvement propre est très faible et permet d'étudier des activités très basses. Sa rapidité d'utilisation et sa bonne résolution sont particulièrement

(1) Réaction de spallation : réaction nucléaire dans laquelle un nombre relativement grand de particules sont émises ce qui correspond à un état d'excitation du noyau permettant l'évaporation de plusieurs particules.

convenables pour cette étude. Cette chambre est complétée par un ensemble électronique [7] très stable. Nous utilisons comme étalons d'énergie alpha le samarium 147 séparé (2,15 MeV), le gadolinium 148 (3,15 MeV) et l'uranium naturel. Les périodes des émetteurs alpha ont été étudiées, quand cela était possible, à la fois par la décroissance de la raie obtenue dans la chambre et aussi avec des détecteurs d'activité alpha, l'un au SZn, l'autre constitué par une petite chambre à air [8].

D) Étude des émetteurs béta. — Chaque élément a été suivi sous un compteur Geiger du type cloche, à parois minces (2 mg/cm²). Une étude de l'absorption dans l'aluminium avec toute une série d'écrans nous a permis d'associer les différentes périodes trouvées avec les β ou e correspondants (*fig.* 1).

E) Étude des rayonnements X et γ. — Le détecteur — un cristal d'iodure de sodium activé au thallium (Harshaw) de 1,5 inch × 1 inch — est monté sur un photomultiplicateur EMI 6097 F. Le réglage est fait pour obtenir, à la sortie de l'amplificateur, 1 volt/1 keV à gain 10^4, ceci pour les rayonnements X. Le gain de l'amplificateur est changé pour étudier les γ jusqu'à 1 MeV. Les impulsions sont analysées avec un sélecteur à 25 canaux. La largeur des canaux est de 4 volts. La mesure des énergies, des périodes des différentes raies, a été faite suivant une méthode classique utilisée précédemment [9].

Comme l'indique le tableau des résultats, on ne peut donner l'énergie de la raie avec précision car chaque raie n'est pas simple mais double ou triple, plusieurs périodes étant associées au même pic.

II. **Données bibliographiques.** — Notre tableau I comporte l'ensemble des résultats publiés à ce jour, à notre connaissance, sur les isotopes étudiés ici. Ceci permet d'apprécier le degré d'incertitude de certains résultats, en particulier pour le terbium, et les difficultés en ce qui concerne la détermination du nombre de masse de plusieurs isotopes.

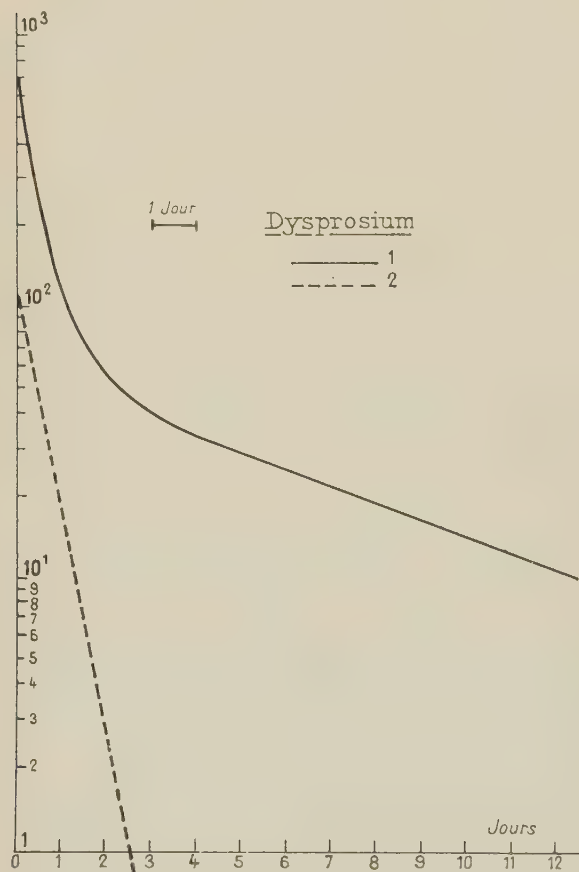


Fig. 1 (*a*). — 1 sans écran 2 périodes { 8 heures / 5 jours
2 avec écran 54 mg Al/cm²
1 période : 8 heures

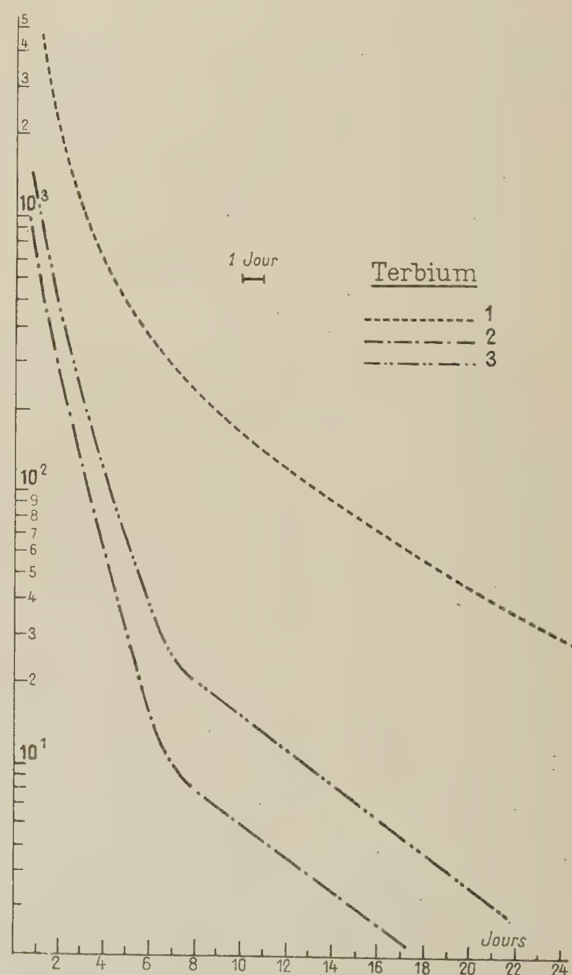


Fig. 1 (*b*). — 1 sans écran : 18 h, 5 j, plus de 10 j.
2 avec écran de 54 mg Al/cm² : 18 h, 5 j.
3 avec écran de 27 mg Al/cm² : 18 h, 5 j, plus de 10 j.

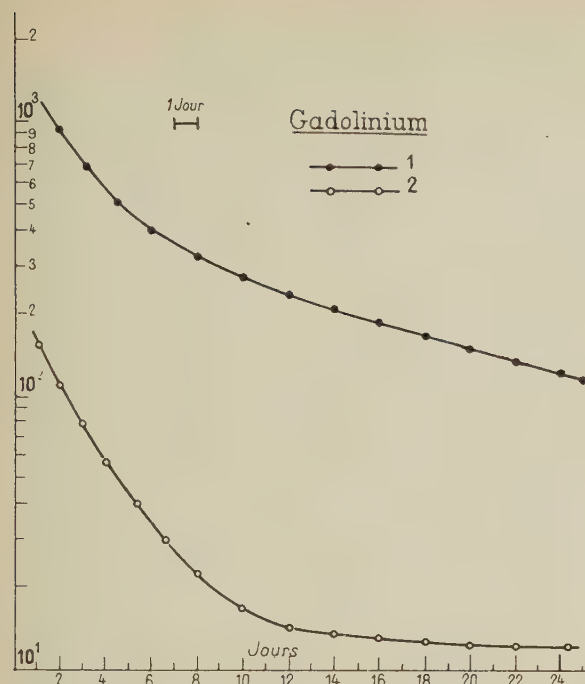


Fig. 1 (*c*). — 1 sans écran { 34 heures, 9 jours, plus de 20 jours

2 avec écran 54 mg Al/cm²

2 périodes { 34 heures, plus de 20 jours

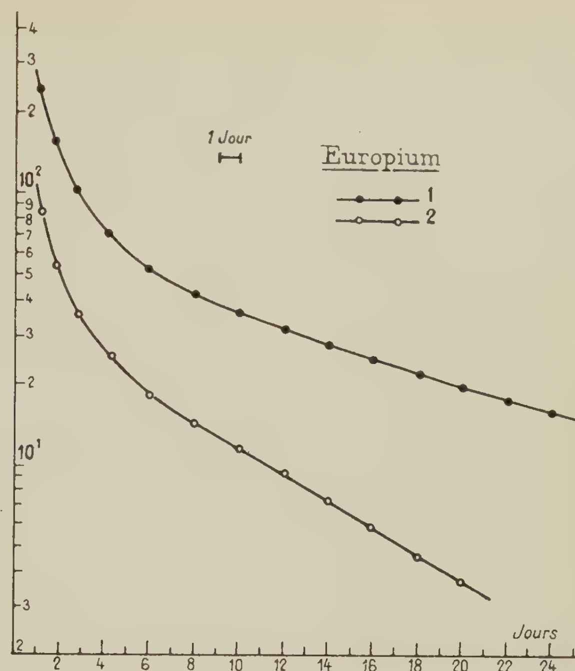


Fig. 1 (*d*). — 1 sans écran { 13h 8, 6 jours, plus de 15 jours

2 avec écran 54 mg Al/cm²

2 périodes { 13h 8, 6 jours

Fig. 1. — Absorption des β et des e dans l'aluminium.

TABLEAU I

	A	*T*	*EC* β e⁻	γ keV	α MeV	Filiations étudiées
y	157 [11]	8,2 h [10]	EC non β^+ [10]	177-325 [10]		$<$ 30 m ou $>$ 100 ans [10]
66		8,5 h [11]	e^- [12]	61-83-144-182-265-327 [12]		pas de filiation observable [11]
				80-325 [11]		
	155 [11]	10 h [13] ~ 20 h [12] 9 h [11]	EC [13] EC [12]	225 ? [13] 230 [12] 80 ? 227 [11] 65 - 90 - 115 - 155 - 161 - 205 - 227-271 [14]		→ plusieurs jours [12] 5 jours [11]
	154	~ 13 h [13]			3,35 [13]	
	153 [11]	5 h [13] ~ 7 h [11]		80 [11]	3,48 [13]	→ ~ 2 jours [11]
	153 ? [15]	10 ans [15]			3,3 [15]	
	152	2,3 h [16] 3,2 h [15]			3,61 [16] 3,66 [15]	
)	158	$<$ 10 m ou $>$ 5 ans [17]				
65	157	4,7 j [18] $<$ 10 m ou $>$ 25 ans [17] $<$ 30 m ou $>$ 100 ans [10]	EC e^- [18]	1 400 [18]		
	156	5,2 j [17]	EC β^- e^- [17] pas β^+	210-260-360-540-760 [17] d'autres		

TABLEAU I (*suite*)

	A	*T*	*EC* β e−	γ keV	α MeV	Filiations étu
		5,6 j [12]	e− [12]	89 - 112 - 155 - 199 - 263 - 297 - 357-422 [12]		→ Gd 156 [1
	156 m	5 h [18] 5,5 h [12]	EC β+ [18] β− [17] IT [12]	88 [12]		
	155	190 j [18] 5,6 j [12]	EC [18] e− [12]	1 400 [18] 45 - 60 - 86 - 100 - 149 - 160 - 180 - 220 - 240 - 263 - 340 - 370 [12]		→ Gd 155 [1
		< 10 m ou > 5 ans [17]				
	154	17,2 h [18] 22 h [12] 20 h [4]	EC β+ [18] e− [12]	1 300 [18] 123-248-347- avec Tb 8 h [12] 346-365 (nb de masse ?) [4]		→ Gd 154 [1
	154	8 h [12] 7,5 h [17]		123-248-347 avec Tb 22 h [12]		→ Gd 154 [1
	153	5,1 j [18] 62 h [12]	EC e− [18] e− [12]	1 200 et 200 [18] 42 - 52 - 68 - 87 - 102 - 110 - 174-195-212-250 [12]		→ Gd 153 [1
		2,5 j [19]		205-210 keV [19]		→ Gd 153 [1
	152	< 10 m ou > 5 ans [17]				
	151	19 h [16] 17 h [20] 20 h [12] 18 h [19]	EC ? [16]	108-180-192-252-288 [12] 154-247 [19]	3,44 [16] α/K > 3 10^{-4} % [20] α/K < 1 % [19]	→ Gd 151 [1
	149 [21]	4,1 h [3] 4,1 h [20] 4,3 h [15]	EC ? pas de β+ [3] EC 85 % [14]		3,95 [3] α/EC > 2 10^{-3} [20] 4,06 [15] α 15 % [14]	parent de Eu 14 parent de Gd 14
	149	9 j [22]	EC e [22]	148 - 272 - 298 - 346 - 461 - 497 - 517-535-940 [24]	3 [22]	
Gd z = 64	149 ?	7 h [23] 9 j [16] 9 j [25]	EC [16] β+/K < 0,4 % [25]	154-292-350-505 [4] 150-299-346 d'autres [25]	α [23] α/EC ∼ 7 10^{-6} [16]	
	148	> 35 ans [16] ∼ 100″ [15]			3,1 [16] 3,3 [15]	
	148 ?	7 h [23]			α [23]	
	147	1,5 j [4] 29 h [25]	EC [25]	232-373-385 [4] 229-396-770-900 [25] 229-396-615-778-932 [26]		→ Eu 147 [4
	146	∼ 12 h [27] 52 j [28]		115-150 [28]		→ Eu 146 de 38 → Eu 4,3 j [
Eu z = 63	150	15 h [29] 13,1 h [30]	β+ [29] β− [30]			
	149	< 1 h ou > 50 j [22] 14 j [29] 120 j [14]	EC e− non β+ [29]	∼ 1 000 [29] 400 [14]		
	148	50 j [22] 58,7 j [30]	EC e− non β+ [22] EC e− [30]			
	147	24 j [22] 24 j [4]	EC e− non β+ [22]	80-124-200 [4]	2,88 α/EC ∼ 10^{-5} [22]	fils de Gd 147
	146	38 h [22] 4,3 j [28]	EC e− [22]	630-660-730-890 [4]		fils de Gd 14 de 50 j [19]
	145	5 j [22]	EC e− [22]			fils de Tb 149

Un certain nombre d'états isomériques compliquent encore le problème. Les isotopes encadrés sont ceux dont la masse a été déterminée au spectrographe de masse.

III. **Résultats expérimentaux.** — A) Dysprosium. — 1) Les dysprosium 157 et 155 ont des périodes voisines. Pour s'assurer qu'il s'agissait bien de deux noyaux différents, nous les avons reformés, au cyclotron de Saclay, par la réaction Gd naturel + α (44 MeV). La séparation chimique étant faite, on voit que dans le Dy les raies de 325 et 220 keV sont dans des proportions très différentes de ce que nous obtenions avec la spallation. La figure 2 présente l'évolution du spectre gamma

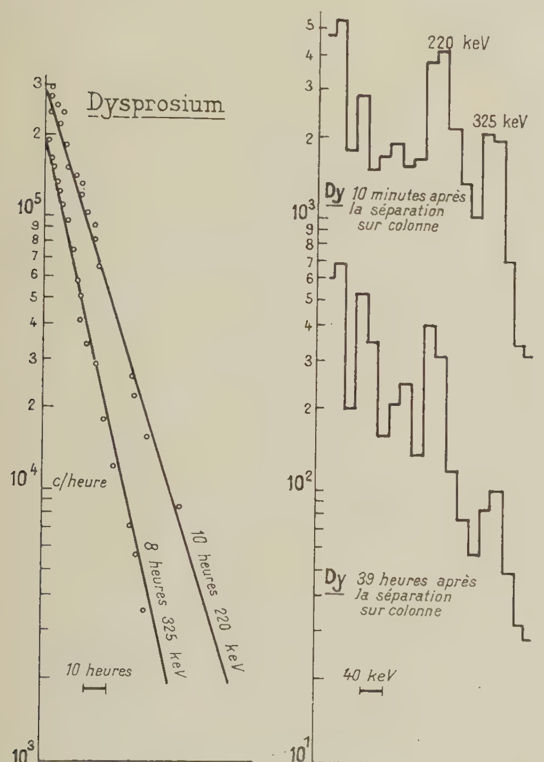


Fig. 2. — Raies gamma 325 keV de ^{157}Dy et 220 keV de ^{155}Dy, et leur décroissance.

au cours de la spallation et prouve encore qu'il s'agit bien de deux noyaux différents.

La raie 325 keV de période 8 ± 0,5 h nous permet de repérer le dysprosium 157 et la raie à 220 keV, de période 10 ± 0,5 h, le dysprosium 155. De plus, nous observons bien le terbium 155, de période 5 j, fils du dysprosium 155. Nous avons ainsi le spectre gamma du terbium 155 seul dans la source de dysprosium (^{156}Dy étant stable) alors que le spectre gamma de la source de terbium après chimie est très complexe (mélange de ^{155,156}Tb et ^{145}Eu de 5 jours) de la filiation alpha de ^{149} Tb.

TABLEAU II

Source de Dy

Énergie du gamma	Bande d'énergie sur laquelle le pic est décomposé	Périodes trouvées
—	—	—
raie X	de 35 keV à 64 keV	9 heures ± 2 4 jours ± 1
~ 90 keV	de 80 keV à 97 keV	8 heures ± 1 5 jours ± 1
~ 105 keV	de 98 keV à 115 keV	2,5 jours ± 1 5 jours ± 1
~ 125 keV	de 120 keV à 131 keV	10 heures ± 1
~ 150 keV	de 145 keV à 153 keV	6 heures ± 2
~ 175 keV	de 160 keV à 187 keV	16 heures ± 2 5 jours ± 1
~ 215 keV	de 205 keV à 225 keV	10 heures ± 0,5 2,5 jours ± 0,5
~ 325 keV	de 305 keV à 353 keV	8 heures ± 0,5
~ 435 keV	de 420 keV à 450 keV	6 heures ± 2 15 heures ± 2
~ 480 keV	de 440 keV à 520 keV	9 heures ± 2 5,5 jours ± 0,5
~ 880 keV	de 840 keV à 920 keV	6 heures ± 0,5 5,3 jours ± 0,5

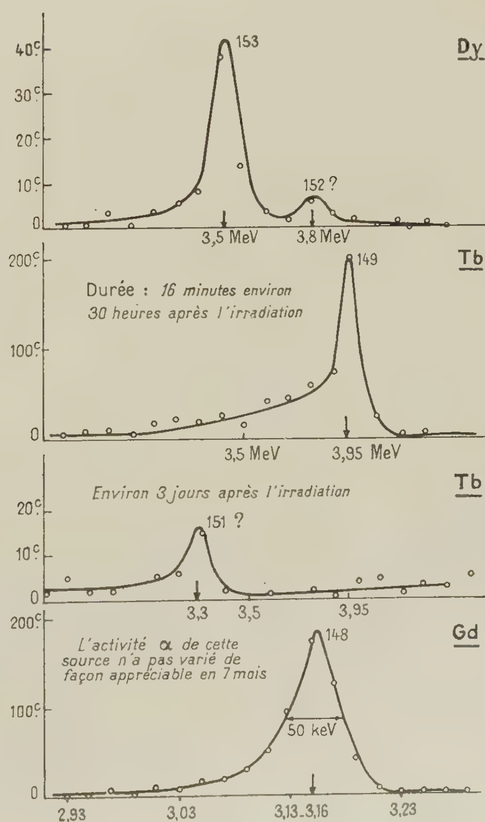


Fig. 3. — Spectre des émetteurs alpha.

2) Le spectre α ne nous permet pas de confirmer la présence du ^{154}Dy. Le spectre gamma présente des raies à 175 et 435 keV associées à une période de 15 h ; nous ne savons pas si ces raies sont associées à ^{154}Dy ou à son fils ^{154}Tb.

3) Le dysprosium 153 a été observé par son spectre alpha (*fig.* 3 et 4). La raie 3,5 ± 0,05 MeV

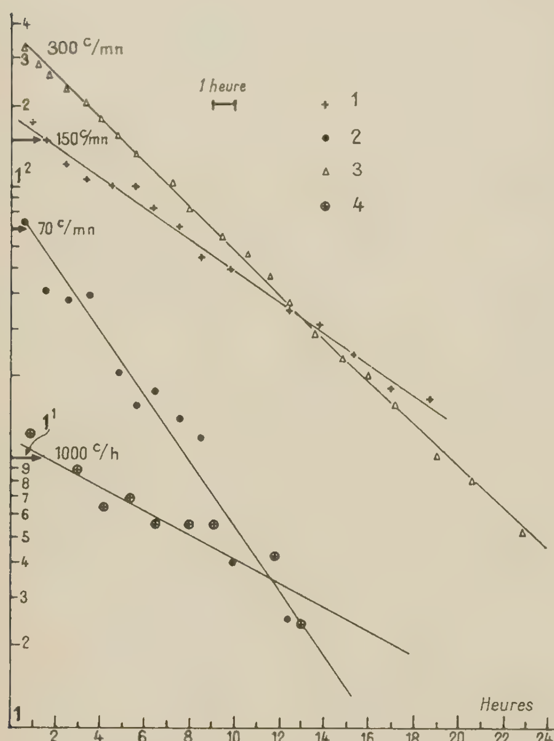


Fig. 4. — Décroissance de quelques émetteurs alpha.

1 Dy 153 350 MeV ± 0,05 MeV
$T_1 = 5{,}5^h \pm 0{,}5^h$ (à la chambre d'ionisation)
2 Dy (152?) 380 MeV ± 0,05 MeV
$T_2 = 3^h \pm 1^h$ (à la chambre d'ionisation)
3 Tb 149
$T_3 = 3{,}8^h \pm 0{,}3^h$ (détecteur au SZn)
4 Gd (146?)
$T_4 = 7^h \pm 2^h$ (détecteur pour activité α [8])

décroît avec une période de 5,5 ± 0,5 h. Nous confirmons donc l'existence de ce noyau trouvé récemment par Rasmussen [13]. Nous voyons les raies gamma 150 keV, 880 keV associées à cette période.

Nous observons de plus la présence du terbium 153 de filiation avec les raies gamma de 105 keV et 215 keV avec une période d'environ 2,5 j, déjà données par d'autres auteurs [12] et [19].

4) Nous pensons avoir observé le dysprosium 152 en alpha, mais l'activité était très faible. Une raie vers 3,80 ± 0,05 MeV décroît avec une période de 3 ± 1 heure.

B) Terbium. — 1) ^{155}Tb et ^{156}Tb : La décomposition gamma est très complexe et donne des résultats grossiers. En effet, les terbium 155, 156 et l'europium 145 présent (fils de la filiation alpha de ^{149}Tb) ont des périodes pratiquement égales. De plus, de nombreuses raies sont communes (voir tableau). C'est en reformant ces isotopes un par un au cyclotron de Saclay que nous pensons retrouver les spectres individuels.

2) ^{154}Tb et ^{151}Tb : ils ont des périodes égales à environ 18 h. Une série de raies sont communes. La raie 340 keV [12] doit nous permettre de repérer le seul ^{154}Tb. Des raies à 440, 520 keV décroissant avec une période de 18 h environ peuvent

TABLEAU III

Source de Tb

Énergie du gamma	Bande d'énergie sur laquelle le pic est décomposé	Périodes trouvées
—	—	—
Raie X	de 35 keV à 64 keV	15 heures ± 2
		2,3 jours ± 0,3
		5 jours ± 0,5
		24 jours
~ 95 keV	de 86 keV à 103 keV	5,3 jours ± 0,5
~ 115 keV	de 109 keV à 120 keV	17 heures ± 2
		5,5 jours ± 0,5
~ 125 keV	de 121 keV à 132 keV	5 heures ± 1
		2,8 jours ± 0,5
~ 175 keV	de 160 keV à 187 keV	16 heures ± 2
		2,5 jours ± 0,5
		24 jours
~ 210 keV	de 200 keV à 225 keV	2,5 jours ± 0,3
		5 jours ± 0,5
~ 255 keV	de 240 keV à 266 keV	15 heures ± 2
		5 jours ± 0,5
~ 295 keV	de 280 keV à 307 keV	4,5 heures ± 1
		2,8 jours ± 0,5
~ 340 keV	de 320 keV à 360 keV	17 heures ± 2
~ 360 keV	de 340 keV à 380 keV	4,8 jours ± 0,5
~ 440 keV	de 420 keV à 460 keV	14 heures ± 2
		5,2 jours ± 0,3
~ 520 keV	de 440 keV à 560 keV	16 heures ± 2
		5,3 jours ± 0,5

être attribuées à l'un ou l'autre de ces isotopes. L'activité alpha de ^{151}Tb a été étudiée mais n'est pas nette dans notre expérience. Voir figure 3.

3) ^{153}Tb : il a été repéré à l'état individuel dans le spectre de filiation de ^{153}Dy. Dans la source de terbium, son spectre gamma est masqué en partie par de nombreuses autres raies.

4) ^{149}Tb : Cet isotope est très facilement repérable par son activité alpha très importante (*fig.* 3 et 4). Nous retrouvons l'énergie à 3,95 ± 0,05 et la période 3,8 ± 0,3 h.

C) Gadolinium. — 1) ^{149}Gd : La présence de cet isotope est très nette. Nous retrouvons de nombreuses raies données dans la littérature. Une raie à 720 keV est nouvelle. L'activité alpha n'a pu être décelée (α/EC 7.10^{-6}) [16].

2) ^{148}Gd : La présence de cet isotope est nettement marquée par son activité alpha (*fig.* 3). Nous retrouvons les résultats de Rasmussen [3] concernant ce noyau : $3,15 \pm 0,05$ MeV. En 7 mois, l'activité de cet isotope est restée constante aux fluctuations statistiques près.

TABLEAU IV

Source de Gd

Énergie du gamma	Bande d'énergie sur laquelle le pic est décomposé	Périodes trouvées
—	—	—
Raie X	de 35 keV à 64 keV	7 heures ± 1 27 heures ± 2 9 jours présence de 24 j.
~ 148 keV	de 136 keV à 160 keV	9 jours
~ 220 keV	de 200 keV à 240 keV	7 heures ± 1 28 heures ± 2
~ 300 keV	de 240 keV à 360 keV	9 jours
—	de 280 keV à 400 keV	7 heures ± 2 9 jours
~ 550 keV	de 510 keV à 590 keV	7 heures ± 2 28 heures ± 2 9 jours
~ 720 keV	de 640 keV à 760 keV	7 heures ± 2 28 heures ± 2 9 jours
~ 800 keV	de 840 keV à 920 keV	28 heures ± 2 9 jours

3) ^{147}Gd : Nous trouvons de nombreuses raies gamma décroissant avec une période d'environ 29 h déjà données dans la littérature

4) $^{146?}$Gd : En effectuant la spallation du tantale par protons de 660 MeV, Gusev, Lilova et Mourine [27] trouvent un gadolinium d'environ 12 ± 4 h, donnant par filiation l'europium 146 de 38 h. Sun, Pecjak et Jenning [23], par la réaction Sm naturel + α (30 MeV) trouvent une activité alpha d'environ 7 h. Ils n'effectuent ni chimie, ni mesure d'énergie alpha. Rasmussen, renouvelant cette dernière expérience, n'observe rien. Or, nous trouvons, dans la source de gadolinium : *a*) une activité alpha décroissant avec une période d'environ 7 h (*fig.* 4) ; *b*) des raies gamma : X, 220 keV, 340 keV, 550 keV, 720 keV, décroissant avec la même période. Nous pensons qu'il s'agit toujours du même nouvel isotope. Une étude particulière lui sera consacrée.

D) Europium. — 1) ^{150}Eu : La présence de cet isotope est très nette (*fig.* 1). La courbe d'absorption montre qu'il possède un rayonnement bêta dur, en accord avec la littérature (1,8 MeV) [30].

TABLEAU V

Source Eu

Énergie du gamma	Bande d'énergie sur laquelle le pic est décomposé	Périodes trouvées
—	—	—
Raie X	de 35 keV à 64 keV	35 heures ± 3 5 jours ± 0,5 24 jours
~ 85 keV	de 76 keV à 92 keV	24 jours
~ 125 keV	de 105 keV à 145 keV	35 heures ± 3 24 jours
~ 180 keV	de 170 keV à 186 keV	5 jours 24 jours
~ 570 keV	de 510 keV à 630 keV	35 heures ± 3 24 jours
~ 780 keV	de 720 keV à 840 keV	4,5 jours ± 0,5

2) ^{149}Eu : Le tableau I montre combien les données concernant cet isotope sont peu sûres. Nous avons été en présence d'une période apparente de 12 ± 2 j, déjà signalée [29], que l'on pouvait, dans tous les cas, décomposer en 24 j et 5 j. Actuellement, cet isotope est donc encore inconnu.

3) ^{148}Eu : Nous n'observons pas cet isotope (les sources n'ont pas été observées assez longtemps).

4) ^{147}Eu : Sa présence est très nette. Nous retrouvons les raies de la littérature et, en plus, une raie à environ 570 keV.

5) ^{146}Eu : Nous trouvons les raies X, 125 keV, 570 keV, associées à la période 38 h de cet isotope [22].

6) ^{145}Eu : On observe la période de 5 j associée aux raies suivantes : X, 180 keV, 780 keV. Un travail récent [28] annonce l'existence probable des isotopes de l'europium 145 et 146 qui auraient tous deux une période de 5 jours, ce qui ne simplifie pas notre étude. Le 146, d'après le travail [28], n'aurait pas de gamma d'énergie $\leqslant$ 636 keV. La raie 180 keV que nous observons doit donc être attribuable à ^{145}Eu.

Remarque. — Le spectre alpha montre plusieurs raies non données dans la littérature, dont une de filiation (que l'on retrouve dans le samarium). Cette expérience n'ayant été faite qu'une fois, nous lui consacrerons une étude particulière pour donner avec certitude l'énergie et la période de ces émetteurs.

Conclusion. — Nous retrouvons la plupart des isotopes déficients en neutrons connus de cette région. De nombreux isotopes obtenus dans ce mécanisme se désintégrant presque exclusivement

par capture électronique, et les schémas étant souvent inconnus, la mesure des sections efficaces de formation ne peut s'effectuer par des méthodes directes. Nous décrirons, dans un autre travail, les méthodes que nous avons utilisées pour arriver à déterminer ces sections efficaces.

Nous tenons à exprimer nos remerciements les plus vifs à M. Svanheden du synchro-cyclotron d'Uppsala (Suède) qui a pris en charge les irradiations des cibles de terbium et leur expédition rapide vers la France.

Manuscrit reçu le 15 janvier 1959.

BIBLIOGRAPHIE

[1] *Thèse* de Rudstam (G.), Uppsala, 1956.
[2] Nervik (W. E.) et Seaborg (G. T.), *Phys. Rev.*, 1955, **97**, 1092.
[3] *Thèse* de Rasmussen (J. O.), U. C. R. L. 1473.
[4] Gorodinsky (G. M.), Mourine (A. N.), Pokrovsky (V. N.), Preobrajensky (B. K.) et Titov (N. E.), *Soviet Phys. Doklady*, 1957, **2**, 39.
[5] Gratot (I.), Rapport C. E. A., n° 913.
[6] Olkowsky (J.), Valladas (G.) et Cohen (L.), *J. Physique Rad.*, 1956, **17**, 587.
[7] *Thèse* de Valladas (G.), Rapport C. E. A., n° 483.
[8] Engelmann et Guillon (H.), Rapport C. E. A., n° 241.
[9] Beydon (J.), Chaminade (R.), Crut (M.), Faraggi (H.), Olkowsky (J.) et Papineau (A.), *Nuclear Physics*, 1956-1957, **2**, 593.
[10] Handley (Th.) et Olson (E. L.), *Phys. Rev.*, 1953, **90**, n° 3, 500.
[11] Dobronravova (A. N.), Krijansky (N. M.), Mourine (A. N.) et Pokrovsky (V. N.), *Izv. Akad. Nauk*, S. S. S. R., 1958, **22**, 7, 815.
[12] Mihelich (J. W.), Harmatz (B.) et Handley (T. H.), *Phys. Rev.*, 1957, **108**, n° 4, 989.
[13] Toth (K. S.) et Rasmussen (J. O.), *Phys. Rev.*, 1958, **109**, n° 1, 121.
[14] Strominger (D.), Hollander (J. M.) et Seaborg (G. T.), *R. M. P.*, 1958, **80**, n° 2.
[15] Sourkov (I. A.), *Doklady Akad. Naouk*, 1957, **115**, 5.
[16] Rasmussen (J. O.), Thompson (S. G.), Ghiorso (A.), *Phys. Rev.*, 1953, **89**, 33.
[17] Handley (T. H.) et Lyon (W. S.), *Phys. Rev.*, 1955, **99**, n° 5, 1415.
[18] Wilkinson (G.) et Hicks (H.), *Phys. Rev.*, 1950,, **79**, 815.
[19] Baranovsky (V. I.), Mourine (A. N.), Pokrovsky (K. N.) et Ioutlandov (I. A.), *Izv. Akad. Naouk*, S. S. S. R., 1958, **22**, 7, 808.
[20] Rollier (S. O.) et Rasmussen (J. O.), U. C. R. L. 2079.
[21] Rasmussen (S. O.), Thompson (S. G.) et Ghiorso (A.), *Phys. Rev.*, 1950, **80**, 475.
[22] Hoff (R. W.), Rasmussen (S. O.) et Thompson (S. G.), *Phys. Rev.*, 1951, **83**, 1068.
[23] Sun (K. H.), Pecjak (F. A.) et Jennigs (B.), *Phys. Rev.*, 1951, **82**, n° 5, 772.
[24] Antonieva (H. M.), Bachelov (A. A.), Djelepöv (C.) et Preobrajensky (K.), *Izv. Akad. Naouk*, S. S. S. R., 1958, **22**, n° 8, 895.
[25] Shirley (V. S.), Smith (W. G.) et Rasmussen (S. O.), *Nuclear Physics*, 1957, **4**, 395.
[26] Antonieva (H. M.), Bachelov (A. A.), Djelepov (C.) et Preobrajensky (K.), *Izv. Akad. Naouk*, S. S. S. R., 1958, **22**, n° 8, 906.
[27] Gusev (O. M.), Lilova et Mourine (A. M.), *Soviet Physics*, J. E. T. P., 1957, **5**, 1295.
[28] Gorodinsky (G. M.), Mourine (A. M.) et Pokrobsky (V. N.), *Izvestia Akad. Naouk*, S. S. S. R., 1958, **22**, 7, 811.
[29] Wilkinson (G.) et Hicks (H. G.), *Phys. Rev.*, 1950, **80**, n° 3, 491.
[30] Mack (C. R.), Neuer (J. J.) et Pool (M. L.), *Phys., Rev.*, 1953, **91**, 4, 903.

DONNÉES NOUVELLES SUR LES SPECTRES DE RÉFLEXION ET D'ABSORPTION LA DISPERSION ANORMALE ET LES PROBABILITÉS DE TRANSITION DE MONOCRISTAUX D'IODURE MERCURIQUE ROUGE PERPENDICULAIRE A L'AXE OPTIQUE

Par M. SIESKIND, S. NIKITINE et J. B. GRUN,

Laboratoire de Spectroscopie et d'Optique du Corps Solide, Institut de Physique, Université de Strasbourg.

Résumé. — Étude de la dispersion anormale de monocristaux de HgI_2 rouge perpendiculaires à l'axe à 293 °K et à 77 °K. On en déduit les valeurs des intensités d'oscillateur aux deux températures indiquées ci-dessus.

Les valeurs trouvées se rapportent probablement, non seulement aux raies excitoniques, mais également à l'absorption de plus courte longueur d'onde.

Abstract. — Investigations of the anomalous dispersion of single crystals of red mercuric iodide perpendicular to the axis have been carried out at 293 °K and 77 °K. The values of the oscillator strength at the above temperatures have been evaluated from the dispersion curve. The values obtained correspond probably to both exciton bands and the absorption of shorter wave lengts.

Dans une note précédente [1], nous avons publié les premiers résultats sur la dispersion anormale au voisinage du bord d'absorption de monocristaux d'iodure mercurique rouge perpendiculaires à l'axe optique. Le présent mémoire a pour objet de préciser ces données et de les compléter par des mesures à la température de l'azote en ébullition (77 °K). Nous en déduirons une limite supérieure de la valeur de l'intensité de l'oscillateur de la raie ordinaire principale.

Dispersion à 20 °C. — Observés par transmission, les cristaux perpendiculaires à l'axe présentent, à la température ordinaire (20 °C) une absorption continue se terminant par un bord situé du côté des grandes longueurs d'onde. Examinés en lumière réfléchie, les cristaux montrent un spectre cannelé de lames minces, dont les franges convergent vers le bord d'absorption. Ces franges permettent d'étudier la dispersion anormale au voisinage du bord d'absorption (5 600 Å). L'indice de HgI_2 étant connu pour plusieurs longueurs d'onde, nous pouvons ainsi raccorder nos mesures aux données connues précédemment. L'erreur commise est de l'ordre de : $\delta n = 2.10^{-3}$.

TABLEAU I

VALEURS EXPÉRIMENTALES DE L'INDICE DE RÉFRACTION DE HgI_2(R) PERPENDICULAIRE A L'AXE A 20 °C

INDICE	LONGUEUR D'ONDE	INDICE	LONGUEUR D'ONDE	INDICE	LONGUEUR D'ONDE
2,913	5 669 Å	2,763	5 862,5 Å	2,506	7 300 Å
2,909	5 673,5	2,757	5 870,5	2 501	7 400
2,892	5 691	2,752	5 883	2,494	7 500
2,882	5 699,5	2,749	5 892	2,489	7 600
2,877	5 704,5	2,743	5 903	2,483	7 700
2,865	5 715,5	2,725	5 952	2,478	7 800
2,861	5 720,5	2,707	6 004,5	2,472	7 900
2,843	5 739	2,694	6 052,5	2,466	8 000
2,838	5 744	2,681	6 096,5	2,460	8 100
2,824	5 760	2,669	6 147	2,456	8 200
2,817	5 771	2,656	6 203	2,452	8 300
2,812	5 776,5	2,646	6 250,5	2,448	8 400
2,810	5 778	2,636	6 300,5	2,445	8 500
2,808	5 781,5	2,617	6 407,5	2,441	8 600
2,805	5 787	2,603	6 500	2,437	8 700
2,802	5 791	2,586	6 606	2,435	8 800
2,797	5 799	2,573	6 703,5	2,433	8 900
2,788	5 812	2,557	6 798	2,431	9 000
2,784	5 820	2,544	6 900	2,430	9 100
2,778	5 829,5	2,534	7 000	2,428	9 200
2,772	5 840,5	2,525	7 100		
2,768	5 851,5	2,515	7 200		

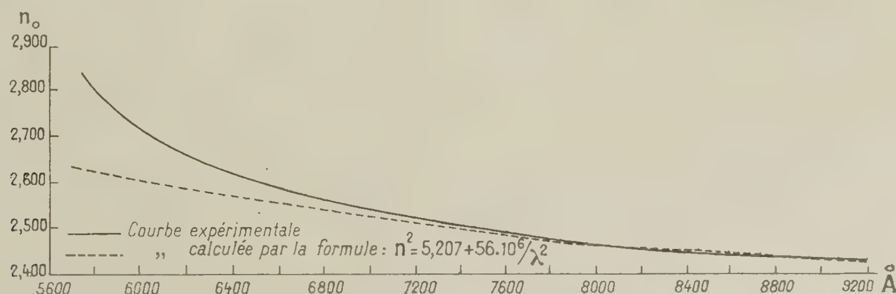


FIG. 1. — Comparaison de la courbe de dispersion expérimentale de Hg I_2 rouge perpendiculaire à l'axe à 20 °C avec une courbe théorique dans la région des grandes longueurs d'onde.

Le tableau I et la figure 1 résument les résultats obtenus à 20 °C. Dans la région spectrale de 7 000 Å à 9 300 Å, le terme comportant l'amortissement dû à l'absorption devient pratiquement négligeable, de sorte que l'on peut appliquer la formule de Sellmeyer :

$$n^2 = n_\infty^2 + D\frac{\lambda^2}{\lambda^2 - \lambda_0^2} = n_\infty^2 + D\frac{1}{1-(\lambda_0/\lambda)^2}. \quad (1)$$

On n'a pas pu obtenir jusqu'à présent des données sur l'absorption U. V. Nous supposerons donc dans ce mémoire que seule la raie (ou la bande) d'absorption observée dans le visible est responsable de la dispersion anormale. Cette hypothèse comporte une approximation qu'il n'est pas possible d'éviter pour le moment.

Comme $\lambda_0/\lambda < 1$, il est commode d'utiliser un développement en série :

$$n^2 = n_\infty^2 + D[1 + (\lambda_0/\lambda)^2 \ldots]$$
$$= (n_\infty^2 + D) + D(\lambda_0/\lambda)^2 + \ldots \quad (2)$$

Nous poserons :

$$\left.\begin{matrix} n_\infty^2 + D = A \\ D\lambda_0^2 = B \end{matrix}\right\}. \quad (3)$$

D'où :

$$n^2 = A + B/\lambda^2. \quad (4)$$

C'est la formule de Cauchy.

Rappelons, en outre, la relation entre D et l'intensité d'oscillateur f :

$$D = f\frac{Ne^2\lambda_0^2}{m\pi c^2} \quad (5)$$

On ne connaît que la limite d'absorption qui se situe vers 5 600 Å, mais les mesures à basse température ont montré que l'absorption se résolvait en une raie principale très intense et un spectre continu moins intense et de plus courte longueur d'onde. On peut donc raisonnablement admettre qu'à la température ordinaire, la raie élargie se confond avec le spectre continu et forme un maximum d'absorption qui se situe approximativement à 5 500 Å.

On retrouve alors la courbe expérimentale avec une bonne précision en posant (voir Tableau II) :

$$A = 5{,}207$$
$$B = 56.10^6\ \text{Å}^2.$$

On en déduit, par application des formules (3)

$$D \sim 1{,}8$$

soit pour l'intensité d'oscillateur rapportée à un ion I^-,

$$f_{I^-} \sim 3.10^{-1}$$

N étant égal à $1{,}6.10^{22}$ électrons/cm³ pour HgI_2.

Cette valeur de f paraît grande en comparaison avec la valeur trouvée pour les raies de CuI [2] ; mais il est probable qu'elle représente la somme des contributions de la raie et du fond continu d'absorption et elle est certainement supérieure à la valeur de f qui serait due à la raie seule.

TABLEAU II

Comparaison de l'indice expérimental et calculé par la formule de Cauchy de HgI_2(R) à l'axe à 20 °C

Longueur d'onde	Indice expérimental	Indice calculé	$\frac{\Delta n}{n}$ en %
5 700	2,881	2,634	9
5 800	2,797	2,623	6
5 900	2,745	2,612	5
6 000	2,709	2,602	4
6 100	2,680	2,592	3
6 200	2,657	2,583	3
6 300	2,636	2,574	2
6 400	2,618	2,565	2
6 500	2,603	2,557	2
6 600	2,587	2,549	2
6 700	2,572	2,542	1
6 800	2,557	2,534	0,9
6 900	2,544	2,528	0,6
7 000	2,534	2,521	0,5
7 100	2,525	2,514	0,4
7 200	2,516	2,508	0,3
7 300	2,506	2,502	0,16
7 400	2,500	2,497	0,1
7 500	2,494	2,491	0,1
7 600	2,488	2,486	0,08
7 700	2,483	2,481	0,08
7 800	2,478	2,476	0,08
7 900	2,471	2,472	0,04
8 000	2,466	2,467	0,04
8 100	2,460	2,463	0,1
8 200	2,456	2,458	0,08
8 300	2,452	2,454	0,08
8 400	2,448	2,450	0,08
8 500	2,444	2,446	0,08
8 600	2,441	2,443	0,08
8 700	2,438	2,439	0,04
8 800	2,436	2,436	0
8 900	2,433	2,432	0,04
9 000	2,431	2,429	0,08
9 100	2,429	2,426	0,1
9 200	2,427	2,423	0,1

Dispersion à 77 °K loin de la bande. — Pour effectuer les mêmes évaluations à la température de l'azote liquide, il est nécessaire de connaître l'épaisseur ou le coefficient de dilatation. Nous avons donc mesuré le coefficient de dilatation de cristaux de HgI_2 de quelques millimètres d'épaisseur entre 293 °K et 77 °K, en utilisant un montage pour l'observation microscopique. La précision des mesures est médiocre (de l'ordre de 20 %), mais elle est suffisante pour connaître l'indice à $\pm 5.10^{-3}$ près. Le coefficient de dilatation α est de l'ordre de :

$$\alpha \sim 6.10^{-5} \pm 1.10^{-5}.$$

On connaît, par ailleurs [3], les spectres d'absorption et de réflexion à 77 °K des cristaux perpendiculaires à l'axe. On observe par transmission une

raie d'absorption large (5 288 Å — 5 358 Å) dont le maximum se situe vers 5 330 Å. Examinés par réflexion, ces cristaux présentent une bande sélective de lumière réfléchie, appelée «bande de rayons restants », par S. Nikitine et R. Reiss [4] et dont le maximum se situe à 5 348 Å (*fig.* 2). Comme à la température ordinaire, le spectre cannelé observé par réflexion (*fig.* 3) nous a permis de tracer la courbe de dispersion. Le cristal est plongé dans l'azote liquide, sauf la partie éclairée. On évite ainsi la réfraction des rayons incidents due à l'azote et on est certain d'étudier la même plage cristalline aux deux températures de 77 °K et 293 °K. On laisse alors le système évoluer vers la température ordinaire et on compte le nombre de franges qui défilent pour une longueur d'onde donnée. La connaissance de la variation du chemin optique (*ne*) entre les deux températures et de α entraîne celle de l'indice *n*.



FIG. 2. — Spectre de réflexion d'un cristal de HgI_2 (rouge) perpendiculaire à l'axe de 77 °K.

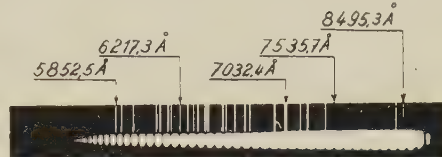


FIG. 3. — Spectre cannelé d'une lame mince de mince de $Hg I_2$ (rouge).

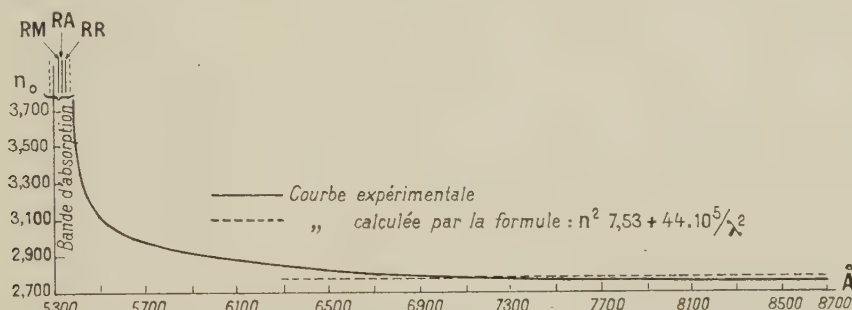


FIG. 4. — Comparaison de la courbe de dispersion expérimentale Hg I_2 rouge perpendiculaire à l'axe à 77 °K avec une courbe théorique dans la région des grandes longueurs d'onde.

TABLEAU III

VALEURS EXPÉRIMENTALES DE L'INDICE DE RÉFRACTION DE HgI_2(R) PERPENDICULAIRE A L'AXE A 77 °K

INDICE	LONGUEUR D'ONDE	INDICE	LONGUEUR D'ONDE	INDICE	LONGUEUR D'ONDE
—	—	—	—	—	—
3,812	5 364 Å	3,069	5 543 Å	2,758	7 300 Å
3,644	5 371	3,047	5 570	2,756	7 400
3,526	5 379	3,024	5 602,5	2,756	7 500
3,479	5 382,5	2,972	5 700	2,755	7 600
3,430	5 388	2,936	5 800	2,751	7 700
3,392	5 392,5	2,905	5 900	2,748	7 800
3,358	5 398	2,882	6 000	2,747	7 900
3,337	5 401,5	2,863	6 100	2,745	8 000
3,325	5 404	2,846	6 200	»	8 100
3,318	5 405,5	2,833	6 300	»	8 200
3,293	5 411,5	2,819	6 400	»	8 300
3,261	5 420	2,806	6 500	»	8 400
3,252	5 423	2,796	6 600	»	8 500
3,231	5 431	2,788	6 700	»	8 600
3,201	5 443,5	2,782	6 800	»	8 700
3,176	5 457	2,776	6 900	»	8 800
3,142	5 476	2,770	7 000		
3 118	5 495	2,765	7 100		
3,100	5 510	2,760	7 200		

Nous résumons sur la figure 4 et le tableau III les résultats obtenus à 77 °K (1). On remarque la brusque montée de l'indice au voisinage de la raie d'absorption. Au contraire, à partir de 7 200 Å, l'indice varie peu et la formule de Cauchy s'applique bien en posant :

$$\lambda_{0,\text{exp}} \simeq 5\,330 \text{ Å}$$
$$A = 7{,}53$$
$$B = 44.10^5 \text{ Å}^2$$

soit :

$$n^2 = 7{,}53 + 44.10^5/\lambda^2.$$

On en déduit :

$$D \sim 0{,}15 \quad \text{soit} \quad n_\infty^2 \sim 7{,}38$$

(1) Il y a lieu de noter que la longueur d'onde de la raie d'absorption se déplace de 5 500 Å à 5 330 Å quand on passe de la température ordinaire à celle de l'azote en ébullition. Il est assez remarquable que, malgré ce fait, l'indice de réfraction à 77 °K est supérieur à sa valeur à la température ordinaire. On pourrait se demander si ce fait n'indique pas une augmentation considérable de la force d'oscillateur de la raie aux basses températures.

d'où :

$$f_{I^-} \simeq 3.10^{-2} \quad (^2).$$

Cette valeur de f_{I^-} est certainement trop grande, mais semble toutefois assez plausible et doit être rapprochée de la valeur trouvée expérimentalement par S. Nikitine et coll. [2] pour CuI : $f_{CuI} \simeq 6.10^{-3}$. En supposant que les 6 électrons externes de l'iode sont également responsables de l'absorption dans les raies de HgI_2 et CuI, on devrait trouver [5] :

$$f_{CuI} \quad \nu_{CuI} = f_{HgI_2} \quad \nu_{HgI_2}$$

soit :

$$f_{HgI_2} \simeq 8.10^{-3}.$$

Étant données les approximations faites, on peut considérer que les ordres de grandeur sont comparables, mais l'accord n'est pas entièrement satisfaisant. Il y a lieu de noter aussi que dans les deux cas, l'iode se trouve dans des réseaux différents, ce qui peut influencer la valeur de f.

Dispersion à 77 °K près de la bande. — D'autre part, les formules de Ketteler-Helmholtz s'appliquent près des bandes d'absorption :

$$\begin{cases} n^2 - k^2 = n_\infty^2 + \dfrac{4\pi Ne^2}{m} \dfrac{(\omega_0^2 - \omega^2) f}{(\omega_0^2 - \omega^2)^2 + \gamma^2 \omega^2} \\ 2nk = \dfrac{4\pi Ne^2}{m} \dfrac{\gamma \omega f}{(\omega_0^2 - \omega^2)^2 + \gamma^2 \omega^2}. \end{cases} \quad (6)$$

(2) Le fait que cette valeur est plus faible que celle que nous avons trouvée à la température ordinaire ne contredit pas la suggestion de la note précédente. En effet, il est probable que dans le premier cas, la valeur de f trouvée se rapporte en même temps à la raie et à la bande d'absorption continue, alors qu'à basse température la raie étant devenue très forte, c'est surtout elle qui détermine la dispersion dans la région spectrale étudiée. Il serait souhaitable de pouvoir séparer les effets de la bande continue de ceux de la raie d'absorption. Mais cette manière de procéder n'a pas pu être appliquée pour HgI^2 (on a pu l'appliquer dans le cas de CuI : R. Reiss et S. Nikitine, à paraître).

On prendra pour n_∞ la valeur loin de la bande (en réalité, on doit prendre une valeur un peu plus élevée). A partir des résultats obtenus par l'étude du spectre d'absorption, on peut obtenir un ordre de grandeur pour la largeur de la raie d'absorption et, par conséquent, le coefficient d'amortissement γ :

$$\gamma = 2(\omega_0 - \omega_{1/2}) \simeq 2{,}6.10^{13} \text{ sec}^{-1}.$$

La durée de vie τ que l'on déduirait de cette valeur serait :

$$\tau \sim 4.10^{-14} \text{ sec.}$$

Nous n'avons pas pu mesurer directement le coefficient d'absorption maximum. Il est toutefois également possible de l'évaluer en faisant $\omega = \omega_0$ dans les formules (6) :

$$\begin{cases} n^2 - k^2 = n_\infty^2 \\ nk = \dfrac{2\pi e^2 N}{m\omega_0} \dfrac{f}{\gamma}. \end{cases} \quad (7)$$

En éliminant n entre ces deux équations, on trouve pour l'indice d'absorption :

$$k_{max} \sim 2{,}9.$$

D'où le coefficient d'absorption maximum K :

$$K = \frac{4\pi}{c} \nu_0 k \sim 6{,}8.10^5 \text{ cm}^{-1}.$$

Finalement, en posant $\lambda_0/\lambda = u$, on trouve :

$$\begin{cases} n^2 - 7{,}38 - k^2 = \dfrac{0{,}15\ (1 - u^2)}{(1 - u^2)^2 + 46.10^{-6} u^2} \\ 2nk = \dfrac{1\ 047.10^{-6}}{(1 - u^2)^2 + 46.10^{-6} u^2}. \end{cases} \quad (8)$$

L'accord entre les valeurs de n calculées par ces formules et les valeurs expérimentales est satisfaisant (tableau IV). A partir des valeurs de λ égales à 6 500 Å, la formule (8) se réduit à la formule de Cauchy.

Manuscrit reçu le 11 mars 1959.

RÉFÉRENCES

[1] Sieskind (M.), *C. R. Acad. Sc.*, 1957, **245**, 1410-412.
[2] Nikitine (S.), *J. Chimie Physique*, 1958, **55**, 621.
[3] Nikitine (S.) et Sieskind (M.), *C. R. Acad. Sc.*, 1955, **240**, 1324.
[4] Nikitine (S.) et Reiss (R.), *C. R. Acad. Sc.*, 1956, **241**, 238.
[5] Nikitine (S.), *J. Chimie Physique*, 1958, **55**, 622 (appendice).

EXPOSÉ ET MISE AU POINT BIBLIOGRAPHIQUE

ÉMISSION SECONDAIRE DES ISOLANTS ET DES SEMI-CONDUCTEURS

Par Pierre PINARD,
Laboratoire d'Optique Électronique, Faculté des Sciences de Lyon.
et Michel MARTINEAU,
Laboratoire de Physique de l'École Polytechnique.

Résumé. — Le coefficient d'émission secondaire δ des isolants et des semi-conducteurs varie, comme pour les métaux, en fonction de l'énergie des électrons incidents, de l'état cristallin de l'échantillon, de son travail de sortie et de l'angle d'incidence des primaires.
Mais la mauvaise conductibilité de ces substances fait apparaître le phénomène de charge de surface dont l'influence sur δ est grande. D'autres facteurs (température, impuretés, temps de bombardement, etc...) peuvent aussi faire varier le coefficient d'émission secondaire parce qu'ils ont, en particulier, une influence sur la charge de surface.

Abstract. — The coefficient of secondary emission δ of insulators and semi-conductors varies, as for metals, with the energy of the incident electrons, the crystalline state of the sample, the work function, and the angle of incidence of the primary electrons.
But the poor conductivity of these substances gives rise to the phenomenon of " surface charge " whose influence on δ is considerable. Other factors (temperature, impurities, duration of bombardement, etc...) can also cause the coefficient of secondary emission to vary because they have, in particular, an influence on the surface charge.

I. **Introduction.** — Les surfaces isolantes et semi-conductrices soumises à un bombardement électronique émettent des électrons appelés électrons secondaires. L'émission secondaire d'un échantillon est caractérisée par le coefficient $\delta = I_s/I_p$ qui est le rapport de l'intensité secondaire I_s émise à l'intensité primaire totale I_p qu'il reçoit. Bien que le coefficient d'émission secondaire de nombreuses substances soit faible (voisin de 1) il peut atteindre, pour certaines, des valeurs maxima supérieures à 10, car δ dépend de nombreux facteurs dont l'influence est parfois très importante.

II. **Influence de l'énergie des électrons primaires sur δ.** — L'interaction d'un faisceau électronique et d'une surface donne naissance à des électrons secondaires « vrais » [1] (électrons émis avec une énergie de quelques volts seulement). Mais en plus de ces électrons secondaires, se trouvent aussi des électrons primaires qui ont : soit subi une réflexion élastique (leur énergie est alors sensiblement égale à celle des électrons incidents), soit perdu de l'énergie après une ou plusieurs collisions inélastiques.

La proportion de ces diverses sortes d'électrons est essentiellement liée à l'énergie des primaires [2]. Les travaux de Farnsworth [3] par exemple ont montré que, pour $V_p = 20$ volts, 40 % des électrons secondaires consistaient en électrons réfléchis élastiquement, et que si V_p devenait supérieur à 100 volts, cette quantité tombait au-dessous de 10 %. Mais lorsque l'on atteint une tension de plusieurs kV, la proportion d'électrons réfléchis élastiquement redevient considérable. Par contre, avec une énergie primaire de quelques kV, c'est le nombre d'électrons rediffusés qui devient important [4] (27 % à 2 000 volts). Aussi les mesures de δ nécessiteront des dispositifs expérimentaux appropriés [5] qui permettront de connaître les proportions d'électrons réfléchis et rediffusés.

Du point de vue théorique, lorsque V_p est inférieur à quelques dizaines de volts ou supérieur à 2 000 volts, une correction s'avère nécessaire pour tenir compte des électrons réfléchis élastiquement : si I_s représente l'intensité secondaire totale et I_r l'intensité des électrons réfléchis élastiquement, on écrira :

$$\delta = \frac{I_s - I_r}{I_p - I_r} = \frac{\delta - \delta_{\text{réf.}}}{1 - \delta_{\text{réf.}}},$$

I_p étant l'intensité primaire.

Enfin, lorsque V_p est suffisamment élevé pour que le nombre d'électrons rediffusés devienne important, Palluel [6] a montré que l'on obtenait δ avec plus de précision en utilisant une formule obtenue par une série d'approximations successives.

Si la variation de V_p change les proportions d'électrons réfléchis et rediffusés, elle contribue également à

faire varier le nombre d'électrons secondaires vrais émis. En effet, en construisant la courbe $\delta = f(V_p)$, on constate que cette courbe présente toujours un maximum (*fig.* 1). Ce maximum peut s'interpréter facilement en utilisant la théorie la plus souvent admise de la production d'électrons secondaires (paragraphe XI) : l'électron primaire, en atteignant le solide,

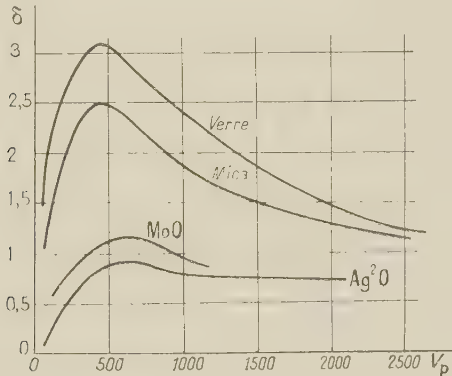


FIG. 1. — Variation du coefficient d'émission secondaire en fonction de l'énergie des primaires, pour une série de surfaces isolantes et semi-conductrices. D'après Loukianov [23].

transmet son énergie aux électrons de l'échantillon qui peuvent ensuite s'échapper et former des électrons secondaires. Aussi, plus l'énergie des primaires augmente, plus I_s croît, ce qui est traduit par la partie ascendante de la courbe. Mais à mesure que la tension V_p s'élève, l'électron primaire entre plus profondément dans le solide, et l'électron secondaire qui sera créé dans des couches de plus en plus éloignées de la surface n'aura pas toujours assez d'énergie pour atteindre cette surface et s'en échapper. Nous aurons alors des pertes par absorption qui ne cesseront de croître, amenant ainsi une diminution de l'émission secondaire, ce qui correspond à la partie décroissante de la courbe.

La figure 1 montre que les variations de δ avec V_p peuvent être très importantes. Aussi caractérise-t-on l'émission secondaire d'une substance en donnant la valeur δ_{max} du maximum de la courbe, en y adjoignant la tension primaire pour laquelle ce maximum a été obtenu.

III. **Influence du travail de sortie.** — Bien qu'une modification du travail de sortie Ø influe moins sur l'émission secondaire que sur l'émission thermoionique [7], son effet n'est cependant pas négligeable [8], [9], et on a pu montrer expérimentalement que, pour des énergies primaires faibles, le rendement de l'émission secondaire est fonction du travail de sortie de l'échantillon [10]. Il est possible de faire décroître le travail de sortie d'un corps en lui faisant par exemple adsorber des atomes d'oxygène [11] et trouver les variations de Ø par l'intermédiaire de mesures photoélectriques [12], [13], [14]. Les expériences de Bruining et de Le Boer [11] ont montré que l'émission secondaire et l'émission photoélectrique présentent toutes deux un maximum, qui est fonction de l'épaisseur d'atomes adsorbés, et que ces maxima se produisent pour une même épaisseur d'atomes adsorbés.

En mesurant le travail de sortie, on constate que δ augmente lorsque Ø diminue : McKay [15] a trouvé que, dans certains cas, δ pouvait augmenter de 60 % lorsque Ø diminuait de moitié. Cependant, lorsque l'énergie des primaires est grande, les travaux de Trump et Van de Graaf [2] montrent que δ_{vraie} est alors à peu près inversement proportionnel à la densité ρ de l'élément, et que la variation du travail de sortie n'a pratiquement plus aucune influence. Ainsi, un métal à faible travail de sortie aura, pour une énergie incidente E_p faible, un coefficient d'émission secondaire plus élevé qu'un métal à grand travail de sortie. Mais ceci ne persiste pas lorsque E_p augmente, et il peut même arriver que δ deviennent plus faible pour les métaux à bas travail de sortie par suite de la plus grande pénétration des primaires, entraînant ainsi une augmentation considérable de l'absorption des secondaires dans le métal lui-même. De toute manière, une variation de Ø provoque en général une variation de δ qui sera d'autant plus marquée que E_p sera faible. C'est pourquoi, lorsqu'on mesure le coefficient d'émission secondaire d'une substance cristalline, on constate que les différentes faces d'un cristal ont des coefficients d'émission secondaire différents, car les divers plans cristallins n'ont pas les mêmes travaux de sortie : Bruining [16] a montré que pour le tungstène, Ø pouvait varier de 4,35 V pour les plans (111) à 4,65 V pour la direction (110). D'ailleurs, la possibilité de distinguer les cristaux de diverses substances cristallines, qu'elles soient métalliques, isolantes ou semi-conductrices grâce aux images fournies par un microscope à balayage [17] prouve bien que les différents plans cristallins n'émettent pas le même nombre d'électrons secondaires.

Pour des raisons identiques, les expériences de Rao [18] (*fig.* 2) montrent qu'un monocristal émet

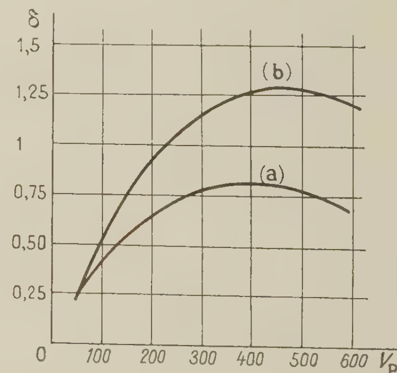


FIG. 2. — Émission secondaire du nickel : (*a*) plan 100 d'un monocristal; (*b*) nickel polycristallin. D'après Rao [18].

moins d'électrons secondaires que la même substance polycristalline, mais des expériences complémentaires sont néanmoins nécessaires pour situer exactement ce problème.

IV. **Influence de l'état ordonné et désordonné d'un échantillon.** — L'expérience fondamentale a été réa-

lisée par Suhrmann et Kundt [19] sur des métaux. Ces auteurs ont constaté une variation sensible de δ lorsqu'un métal passe de l'état ordonné à l'état désordonné. (Ils obtenaient l'état désordonné en évaporant une couche d'or sur un support refroidi dans l'air liquide, et l'état ordonné en laissant l'échantillon reprendre la température ambiante.) Ils ont toujours trouvé une émission secondaire supérieure pour l'état désordonné du métal, comme l'indique la figure 3.

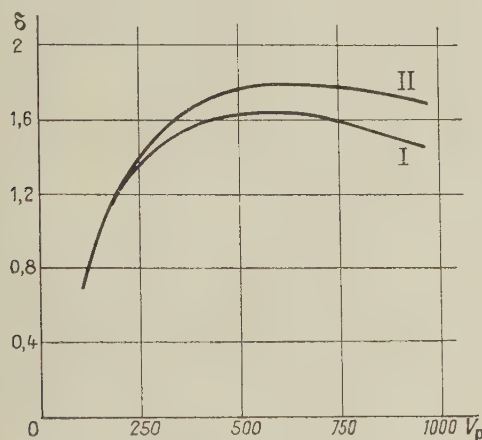


FIG. 3. — Émission secondaire de l'or : I : état ordonné ; II : état désordonné. D'après Suhrmann et Kundt [19].

Ces courbes nous montrent une augmentation de l'accroissement de δ avec V_p, et Shurmann et Kundt ont prouvé que cet accroissement résidait dans la réabsorption plus facile des électrons secondaires à l'état ordonné qu'à l'état désordonné, et non pas dans la pénétration plus grandes des primaires.

V. **Influence de l'état de surface de l'échantillon.** — Les mesures faites par Bruining [20] et les résultats

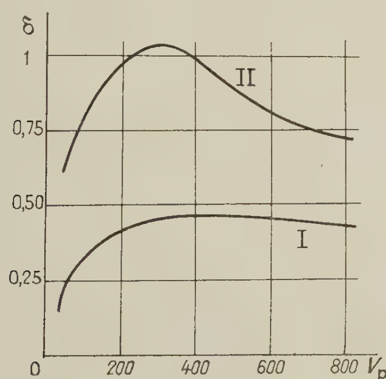


FIG. 4. — Émission secondaire : I : de la suie ; II : d'une surface lisse de C. D'après Bruining [20].

obtenus par Heydt [21] montrent que le coefficient d'émission secondaire d'une surface non réfléchissante est inférieur à celui d'une couche polie de la même substance (*fig.* 4). Le coefficient δ varie parce que les électrons secondaires ne rencontrent pas d'obstacles en quittant une surface polie, alors qu'ils peuvent être interceptés par les molécules de la surface non réfléchissante. De plus, dans le cas des isolants et des semi-conducteurs, l'état de surface peut influer aussi sur la charge de surface (paragraphe VIII) de l'échantillon et contribuer de cette manière à faire varier δ dans des proportions encore plus grandes.

VI. **Influence de la température.** — Dans le cas des métaux [22], δ est peu sensible aux variations de température (Loukianov [23] a cependant trouvé une augmentation de 4 % pour du molybdène chauffé de 20° à 1 600 °C, et Morozov [24] une diminution de δ de 1,2 % pour du nickel dont la température passe de 20° à 800 °C), et l'influence de la température est ordinairement du même ordre dans le cas des isolants. (Johnson et McKay [25] ont obtenu une diminution de δ de 2 % pour des cristaux isolants de 20° à 600 °C.) Mais si l'émission secondaire des métaux et des isolants varie peu en fonction de la température de l'échantillon, l'influence des changements de température sera bien plus marquée dans le cas des semi-conducteurs. Les résultats obtenus par Timofeev [26] et représentés par la figure 5 sont très significatifs. Les variations de δ

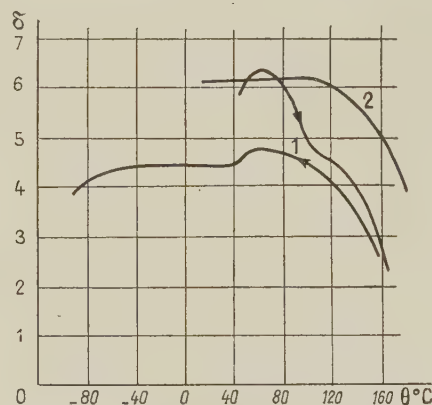


FIG. 5. — Variation du coefficient d'émission secondaire en fonction de la température : 1 : oxyde de césium, 2 : sulfure de cuivre-césium. D'après Timofeev [26].

ont un caractère réversible (sauf s'il se produit, en cours de chauffage, des modifications de la structure de la surface étudiée).

On pense [23], [27] que ces variations sont liées à de grands changements de la concentration des électrons de conductibilité dans les couches semi-conductrices de l'échantillon. Les variations de concentration de ces électrons influent à leur tour sur la longueur du libre trajet des électrons secondaires et sur les conditions de remplacement des électrons libérés (charge de surface : paragraphe VIII).

VII. **Variation de δ avec l'angle d'incidence des primaires.** — De nombreux auteurs [21], [28], [29] ont étudié l'influence sur le coefficient d'émission secondaire des variations de l'angle d'incidence α des primaires. Tous ont montré que l'émission secondaire était

plus forte sous incidence oblique que sous incidence normale.

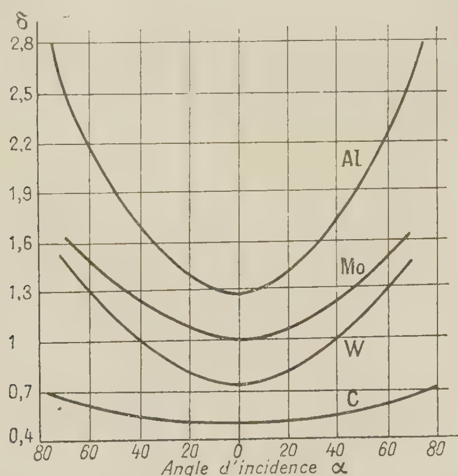


FIG. 6. — Variation du coefficient d'émission secondaire en fonction de l'angle d'incidence des primaires. D'après Müller [30].

La raison de l'accroissement de δ en fonction de α est simple [31] : si des électrons primaires d'énergie E_p donnée tombent normalement sur l'échantillon ($\alpha = 0$), ils produisent des secondaires à une certaine profondeur x, alors que si l'angle d'incidence α augmente, cette profondeur n'est plus que $x.\cos\alpha$ (*fig.* 7). Aussi,

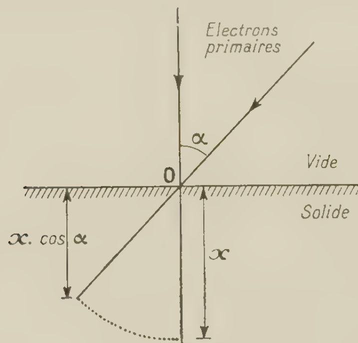


FIG. 7.

à mesure que α augmente, l'absorption par l'échantillon des électrons secondaires émis devient de plus en plus faible.

Ces considérations théoriques ne s'appliquent qu'au cas d'une surface polie, car il est impossible de définir correctement l'angle d'incidence des primaires sur une surface non polie.

Enfin, lorsque le faisceau primaire tombe sous incidence rasante sur la surface ($\alpha = 90°$), les phénomènes d'absorption des primaires sont alors éliminés. On ne peut donc pas espérer trouver un maximum de δ pour cette valeur de l'angle d'incidence.

VIII. **Charge de surface.** — Nous nous sommes proposés d'étudier les divers facteurs susceptibles de faire varier l'émission secondaire des isolants et des semi-conducteurs, et de rechercher leur influence respective.

Les travaux effectués à l'heure actuelle portent surtout sur l'émission secondaire des métaux, et les résultats obtenus sont toujours semblables à ceux que l'on obtient pour les diélectriques, et ont l'avantage d'être très souvent bien plus significatifs.

Mais la mesure du coefficient réel d'émission secondaire des surfaces semi-conductrices et surtout des surfaces isolantes est liée à une série de difficultés spécifiques. La principale provient du manque de conductibilité électrique de ces substances. Il est en effet impossible de déterminer de façon précise le potentiel de la surface par suite de l'apparition du phénomène de « charge de surface », phénomène qui se produit au cours même des mesures et peut entièrement fausser les résultats expérimentaux [23].

Supposons en effet que, pour un parfait isolant, l'énergie des primaires soit telle que nous ayons un coefficient d'émission secondaire réel inférieur à 1. Au cours du bombardement électronique, cette surface va se charger négativement puisqu'il part moins d'électrons qu'il en arrive. Il s'ensuit que le potentiel de la surface par rapport à la cathode primaire va diminuer et les électrons primaires arriveront sur cette surface avec une énergie de plus en plus faible. Comme le montre Bruining [32] deux cas sont alors possibles (*fig.* 8) :

a) Si nous nous trouvons dans la région où δ décroît lorsque l'énergie des primaires diminue (région 1), la différence de potentiel entre la surface et la cathode va tendre progressivement vers zéro, et aucun électron primaire n'atteindra la surface.

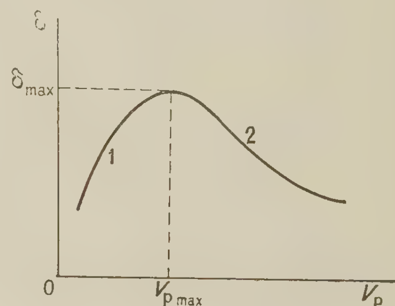


FIG. 8.

b) Si au contraire nous sommes dans le cas où δ augmente lorsque V_p diminue (région 2 de la courbe), la différence de potentiel entre la surface et la cathode va décroître jusqu'à une valeur pour laquelle δ est égal à 1. L'échantillon gardera alors un potentiel stable puisqu'il y aura autant d'électrons émis que d'électrons incidents.

Mais par contre, si à l'instant initial, δ est supérieur à 1 (donc $I_s > I_p$) la surface va se charger positivement puisque le nombre d'électrons quittant la surface sera supérieur au nombre d'électrons incidents, et le potentiel de la surface va croître jusqu'au moment où il aura tendance à se stabiliser, c'est-à-dire jusqu'à ce que δ devienne égal à 1 ($I_s = I_p$).

Mais ce processus ne suivra son cours que lorsque le potentiel du collecteur chargé de recueillir les électrons secondaires émis sera suffisamment important pour que, malgré les variations du potentiel de la surface isolante, les électrons qui s'échappent du diélectrique se trouvent toujours dans un champ accélérateur. En effet, si le potentiel de la surface dépasse celui du collecteur, les électrons secondaires sont dans un champ freinant et retournent vers la cathode secondaire. Son potentiel va donc décroître jusqu'à une valeur pour laquelle il y aura autant d'électrons primaires que d'électrons secondaires atteignant le collecteur, et la valeur de δ sera constamment égale à l'unité. Cette charge de surface gêne considérablement les mesures, et certains auteurs [23], [33] ont imaginé des dispositifs expérimentaux permettant de pallier aux variations de potentiel, pendant les mesures, de la surface isolante bombardée.

En marge de ce phénomène de charge de surface, si la couche du diélectrique est mince et si V_p est grand, il se crée dans l'épaisseur de la couche isolante un champ électrique très élevé, responsable d'une sorte d'auto-émission qui se superpose alors à l'émission secondaire vraie [23].

Ces considérations sur la charge de surface s'appliquent au cas d'un parfait isolant. Pour les semi-conducteurs qui ne sont en fait que des isolants plus ou moins bons, ces phénomènes seront d'autant moins marqués que la conductibilité électrique de la substance sera meilleure.

IX. **Influence des impuretés.** — Il est facile de faire croître la conductibilité d'un semi-conducteur en lui incorporant des impuretés et ainsi de faire varier son coefficient d'émission secondaire. Des mesures furent faites, en particulier par L. R. Koller et J. S. Burgess [34], sur le germanium, le silicium et le bore préparés à partir de mélanges très purs sous forme de cristaux déposés sur un disque de fer, et les résultats qu'ils ont obtenus sont en accord avec ceux de J. B. Johnson et K. G. McKay [35]. De même, Mendenhall [36] en vaporisant des films de silicium et de germanium sur du tantale très pur dégazé auparavant à 2 000 °C, a obtenu des conclusions analogues à celles de Koller : $\delta_{max} = 1,59$ pour $V_p = 650$ V, cette valeur relativement faible de δ provenant du manque d'impuretés dans l'échantillon. Par contre, lorsqu'il a vaporisé le germanium ou le silicium sur du platine ordinaire, il a trouvé une valeur maximum de δ égale à 4,5 pour $V_p = 500$ V, donc 3 fois supérieure à la valeur précédente.

Wright [37] fait remarquer que, si l'addition de centres d'impuretés dans un isolant fait varier considérablement son coefficient d'émission secondaire, l'augmentation ainsi obtenue est en général essentiellement liée à la nature des impuretés : par exemple, si des centres d'impuretés sont ajoutés dans un isolant ayant un coefficient d'émission secondaire faible, δ restera faible si ces impuretés sont des corps ayant un grand travail de sortie, mais δ peut devenir très grand si l'on ajoute du césium. Par contre, l'addition de centres d'impuretés dans un isolant ayant un fort coefficient d'émission secondaire ne diminuera jamais la valeur de ce coefficient. Enfin, dans le cas où l'isolant est rendu conducteur par la formation d'un excès stœchiométrique de son propre métal, les valeurs de δ resteront élevées.

Le tableau suivant [38] nous donne les valeurs de δ_{max} pour quelques isolants et semi-conducteurs, et montre bien l'influence de « l'activation » d'un corps par des impuretés.

Corps	$\delta_{max.}$	V_p Volts
Bore	1,2	150
Silicium	1,1	250
Germanium	1,2	400
Ag_2O	1	400
Ag_2O + Au	1,2	600
Ag_2O + Cs	9	800
NaCl	6	600
NaCl + Na	9,7	700
NaCl + Cs	22	1 400
CsCl	6,5	600
CsCl + Cs	14	1 700

Les impuretés jouent donc un très grand rôle dans la détermination des valeurs de δ pour les isolants et semi-conducteurs, mais il est très difficile d'interpréter le phénomène, car le mécanisme du transport des charges à l'intérieur d'une substance semi-conductrice est mal connu. Plusieurs théories s'affrontent, mais rejoignent dans leurs grandes lignes celle donnée par Verwey [39], [40] pour le bore, le silicium et le germanium.

Lorsque les impuretés proviennent de corps placés dans la 3e colonne de la classification périodique, tels que le gallium, le bore, l'aluminium, etc..., on obtient un semi-conducteur qui se comporte comme si le transport des charges se faisait grâce à des charges positives (semi-conducteur dit à « conductibilité par trou »), alors qu'au contraire si l'impureté est un élément de la 5e colonne, tels que le phosphore, l'arsenic, l'antimoine, etc..., le transport des charges est provoqué par des charges négatives. Enfin, dans le cas de semi-conducteurs non stœchiométriques (oxydes ou sulfures métalliques), un défaut par rapport à la composition stœchiométrique se comportera comme une impureté ; on obtient alors un semi-conducteur « par défaut », et la conductibilité proviendra de l'excès d'oxyde ou de métal.

Ces divers comportements s'expliquent dans l'hypothèse évidente où les atomes contaminateurs occupent une place normale dans le réseau. La substitution d'un atome d'aluminium à un atome de germanium ou de silicium provoque un manque d'électrons : un électron d'un atome de germanium voisin de celui d'aluminium a tendance à former avec ce dernier un ion négatif. Donc, à l'endroit où il manque un électron, il existe un « trou » qui se comporte comme une charge positive qui se meut dans le semi-conducteur.

D'une manière analogue, le germanium contaminé avec l'antimoine aura cette fois un électron (donc charge négative) qui pourra se mouvoir dans le milieu, car des 5 électrons de valence de l'antimoine, seuls 4 concourent à la liaison chimique avec les 4 électrons de valence du silicium ou du germanium, le 5e restant mobile. Pour les semi-conducteurs non stœchio-

métriques, l'apparition d'un excès d'oxygène ou de métal provoquera des défauts dans le réseau, ce qui rendra le corps conducteur, cette conductibilité augmentant d'ailleurs à mesure que la température s'élève.

X. Influence du temps sur δ. Centres de couleurs. Effet Malter. — Les expériences ont montré que le coefficient d'émission secondaire des isolants et des semi-conducteurs est susceptible de varier en fonction du temps de bombardement. Un bon exemple nous est fourni par l'étude de l'émission secondaire des halogénures alcalins [41] : la valeur initiale de δ_{max} est grande, mais sous le bombardement électronique, δ diminue beaucoup en quelques heures (*fig.* 9).

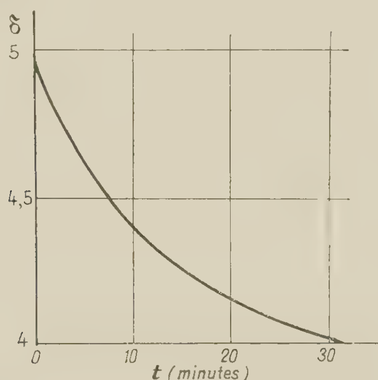


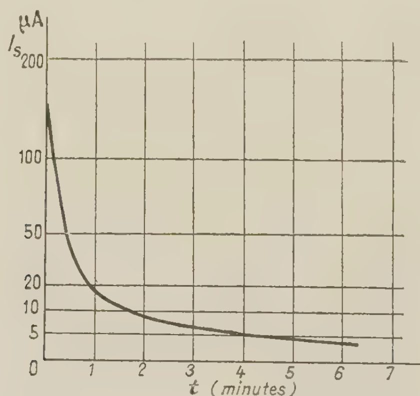
Fig. 9. — Variation en fonction du temps, du coefficient d'émission secondaire de NaCl. D'après Bruining [41].

L'interprétation théorique de ce phénomène s'avère très délicate. (Bruining [41] montre que, dans le cas de NaCl, cette décroissance provient de la formation de sodium libre dans le cristal.)

Mais parallèlement à cette décroissance de l'émission secondaire des halogénures, on voit se développer des « centres de couleurs » (centres F). Les atomes alcalins en excès dans l'halogénure occupent dans le réseau les positions habituelles des ions alcalins. Une telle lacune se comporte comme une charge positive, de sorte qu'un électron gravitant autour d'elle sera capturé, formant ainsi un centre F. Cet électron peut être, soit un électron primaire, soit un secondaire émis dans le cristal [42]. La corrélation entre la décadence de δ et la formation de centres de couleurs n'est pas claire. Mais Wright [37] en s'aidant des travaux de Meyer [43] a donné une théorie permettant de comprendre le phénomène.

La conclusion qu'il faut en tirer est que, lorsque le temps de bombardement augmente, le nombre de centres de couleurs augmente également, ce qui implique que la probabilité de capture d'un secondaire va elle aussi s'accroître, provoquant ainsi une diminution de δ.

De même que δ varie en fonction du temps de bombardement, il existe des cas où l'on a encore émission d'électrons secondaires après avoir interrompu le bombardement électronique primaire : lorsqu'une couche semi-conductrice ayant un fort coefficient d'émission secondaire, est séparée de son support métallique par une mince couche isolante, le bombardement primaire provoque l'émission d'électrons secondaires, et la couche prend une charge positive. Mais si l'épaisseur de l'isolant est faible, il s'établit alors un champ très important entre la surface et le métal (10 à 100 volts pour une couche isolante de 10^{-5} cm). Puisque l'effet est dû à la charge de la couche externe, il y aura un certain délai entre l'établissement du courant primaire et celui du champ, et de même il faudra un certain temps pour observer la décroissance de l'émission secondaire après suppression du faisceau primaire. C'est donc une sorte « d'émission secondaire retardée »,



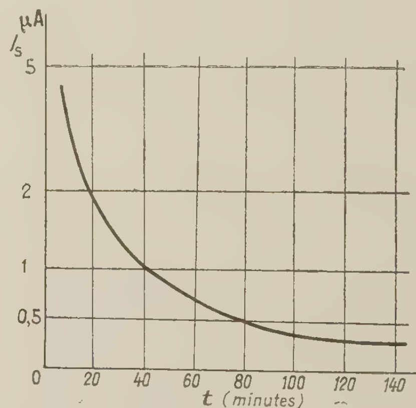


Fig. 10. — Décroissance du courant secondaire pour un film isolant fin (film [Al]-Al_2O_3-Cs_2O). D'après Malter [44].

et comme l'indique la figure 10, le retard peut atteindre plusieurs minutes.

Cet effet fut observé tout d'abord par Malter [44]. D'autres auteurs [45], [46] reprirent l'étude de l'émission secondaire de couches isolantes minces, et les résultats obtenus sont parfaitement en accord avec ceux de Malter.

Enfin, lorsque le bombardement électronique primaire se prolonge, il peut arriver que la substance isolante ou semi-conductrice se décompose sous l'effet de ce bombardement, provoquant ainsi une diminution de l'émission secondaire. Très peu de choses sont connues actuellement sur ce sujet (certains auteurs [47], [48] ont montré par exemple que divers oxydes métalliques

tel que MoO_2, se décomposent sous le bombardement électronique en libérant de l'oxygène). Mais on ne peut pas à l'heure actuelle conclure sur ce point de façon satisfaisante.

XI. **Données théoriques.** — La plus ancienne théorie sur la production d'électrons secondaires s'appuie sur la loi de Whiddington. Quand des électrons primaires traversent la surface d'une substance, ils transfèrent leur énergie aux électrons de l'échantillon, à des profondeurs plus ou moins grandes. Le comportement de ces électrons primaires est déterminé par leur énergie perdue (qui est fonction de la profondeur de pénétration), leur absorption et leur dispersion. L'énergie perdue par les primaires, en accord avec les travaux de Bruining [49] et de Spear [50], est donnée par la loi de Whiddington. L'intensité de l'émission secondaire dépend essentiellement de l'énergie perdue par les électrons primaires à l'intérieur du solide. Aussi, comme le fait Dekker [51], l'émission électronique secondaire peut se décomposer en deux temps :

— production d'électrons secondaires résultant de l'interaction entre les primaires et les électrons de la couche ;

— probabilité pour les secondaires d'atteindre la surface et de s'en échapper.

Très peu de choses sont connues sur la probabilité de transférer de l'énergie aux électrons de la couche. Quant au mécanisme d'échappement des secondaires, il n'a jusqu'ici reçu que peu d'attention. Mais toujours selon Bruining [49], ces secondaires sont généralement absorbés en allant vers la surface suivant une loi exponentielle. Aussi, pour que l'électron secondaire soit émis après avoir reçu de l'énergie de la part de l'électron primaire, il doit être capable de traverser la substance pour arriver à la surface, et ensuite d'avoir une énergie suffisante pour vaincre le travail de sortie.

Ce processus théorique est complété par toute une série de phénomènes secondaires : on a montré [6] par exemple qu'il fallait considérer aussi, pour des électrons primaires de forte énergie, les secondaires vrais produits par les électrons primaires réfléchis au cours de leur trajet dans la matière, ce qui aura pour première conséquence de prouver que la profondeur à laquelle sont formés les secondaires a une valeur plus faible que celle donnée par la loi de Whiddington.

Certains auteurs [52] ont utilisé le modèle de Sommerfeld pour établir une théorie de l'émission secondaire. D'autres encore, tels Dekker et Van der Ziel [53] se sont servis du modèle de Bloch et de l'équation de Schrödinger pour tenter d'interpréter l'émission secondaire. Enfin plus récemment, dans le cas des isolants, Dekker [54], [55] a mis au point une théorie sur la possibilité d'émission secondaire par les excitons [56], et a aussi essayé [57] de donner une interprétation plus générale de l'émission secondaire.

La littérature nous fournit donc de nombreux documents qui tentent d'interpréter la production d'électrons secondaires, mais il faut bien admettre qu'actuellement, aucune théorie n'est capable d'expliquer de façon satisfaisante la totalité des phénomènes observés.

Conclusion. — Les développements sans cesse croissants de l'électronique au cours de ces dernières années ont eu pour conséquence d'accroître considérablement les recherches sur l'émission secondaire des isolants et des semi-conducteurs. Les résultats expérimentaux actuels sont en général précis et concordants. Mais l'interprétation théorique n'est pas encore tout à fait claire : le nombre élevé de facteurs importants susceptibles de faire varier δ complique déjà le problème. Mais c'est surtout parce que ces divers facteurs n'interviennent jamais indépendamment les uns des autres (interdisant ainsi toute étude séparée de leur influence) que la théorie de l'émission secondaire est délicate.

Manuscrit reçu le 15 décembre 1958.

BIBLIOGRAPHIE

[1] BRUINING (H.), Physics and applications of secondary electron emission, Londres, 1954, p. 5.
[2] TRUMP et VAN DE GRAAF, *J. Appl. Physics*, 1947, **18**, 327.
[3] FARNSWORTH, *Phys. Rev.*, 1925, **25**, 41.
[4] PALLUEL (P. C. R.), *C. R. Acad. Sc.*, Paris, 1947, **224**, 1551.
[5] BRUINING (H.), Physics and applications of secondary electron emission, Londres, 1954, p. 3.
[6] PALLUEL (P. C. R.), *C. R. Acad. Sc.*, Paris, 1947, **224**, 1492.
[7] SIXTUS (K.), *An . Physik Lpz.*, 1929, **3**, 1017.
[8] TRELOAR L. R. G.), *Proc. Phys. Soc.*, 1937, **49**, 392.
[9] HERRING (C.), *Rev. Mod. Physics*, 1949, **21**, 185.
[10] BRUINING (H.), Physics and applications of secondary electron emission, Londres, 1954, p. 70.
[11] BRUINING (H.) et DE BOER (J. H.), *Physica*, 1939, **6**, 941.
[12] MIYAKE (K.), *J. Phys. Soc. Japan*, 1955, **2**, 164.
[13] MIYAKE (K.), *J. Phys. Soc. Japan*, 1955, **10**, 912.
[14] TIMOFEEV (P. V.), *Radiot. Elektron.*, S. S. S. R., 1957, **2**, 85.
[15] MCKAY (K. G.), *Phys. Rev.*, 1942, **61**, 708.
[16] BRUINING (H.), Physics and applications of secondary electron emission, Londres, 1954, p. 40.
[17] DAVOINE (F.), *Thèse*, Lyon, 1958.
[18] RAO (S. R.), *Proc. Roy. Soc.*, 1930, **128**, 57.
[19] SUHRMANN (R.) et KUNDT (W.). *Z. Physik*, 1943, **120**, 363.
[20] BRUINING (H.), *Thèse*, Leiden, 1938.
[21] HEYDT (H.), *Rev. Sc. Instr.*, 1950, **21**, 639.
[22] BRUINING (H.), Physics and applications of secondary electron emission, Londres, 1954, p. 45.
[23] LOUKIANOV (S. J.), *Photoelementi Acad. Sc.*, Moscou, 1948, **3**, 89.
[24] MOROZOV, *J. Techn. Phys.*, U. R. S. S., 1941, **11**, 402.
[25] JOHNSON (J. B.) et MCKAY (K. G.), *Phys. Rev.*, 1952, **85**, 390.
[26] TIMOFEEV (P. V.), *J. Techn. Phys.*, U. R. S. S., 1936, **6**, 1641.
[27] BRUINING (H.), Physics and applications of secondary electron emission, Londres, 1954, p. 88.
[28] SALMON (J.), *J. Physique Rad.*, 1954, **3**, 190.
[29] BRUINING (H.), *Physica*, 1938, **5**, 901.
[30] MULLER (H. O.), *Z. Physik*, 1937, **104**, 475.
[31] BRUINING (H.), Physics and applications of secondary electron emission, Londres, 1954, p. 100.
[32] BRUINING (H.), Physics and applications of secondary electron emission, Londres, 1954, p. 21.
[33] DUFOUR (C.), *J. Physique Rad.*, 1953, **6**, 429.

[34] Koller (L. R.) et Burgess (J. S.), *Phys. Rev.*, 1946, **70**, 571.
[35] Johnson (J. B.) et McKay (K. G.), *Phys. Rev.*, 1952, **85**, 390.
[36] Mendenhall (H. E.), *Phys. Rev.*, 1949, **76**, 458.
[37] Wright (D. A.), Methuens' monographs on physical subject. Semi-conductors, p. 85 à 90.
[38] Koller (L. R.) et Burgess (J. S.), *Phys. Rev.*, 1946, **70**, 571. Trey (F.), *Phys. Z.*, 1943, **44**, 38. Bruining (H.), Physics and applications of secondary electron emission, Londres, 1954, p. 53.
[39] Verwey (E. J. W.), *Rev. Techn. Philips*, 1947, **9**, 46.
[40] Verwey (E. J. W.), *Rev. Techn. Philips*, 1951, **13**, 89.
[41] Bruining (H.), *Physica*, 1939, **6**, 823.
[42] Seitz (F.), *Rev. Mod. Physics*, 1946, **18**, 384 et 1954, **26**, 7.
[43] Meyer (C. F.) et Hermann (R. C.), *J. Chem. Phys.*, 1948, **16**, 161.
[44] Malter (L.), *Phys. Rev.*, 1936, **50**, 48.
[45] Koller (L. R.) et Johnson (R. P.), *Phys. Rev.*, 1937, **52**, 519.
[46] Piore (E. R.), *Phys. Rev.*, 1937, **51**, 1111.
[47] Headrick (L. B.) et Lederer (E. A.), *Phys. Rev.*, 1936, **50**, 1094.
[48] Jacobs (H. H.), *J. Appl. Physics*, 1946, **17**, 596.
[49] Bruining (H.), Physics and applications of secondary electron emission, Londres, 1954, p. 78.
[50] Spear (W. E.), *Proc. Phys. Soc.*, 1955, **68**, 991.
[51] Dekker (A. J.), *Physica*, 1955, **21**, 29.
[52] Baroody (E. M.), *Phys. Rev.*, 1950, **78**, 780.
[53] Dekker (A. J.) et Van der Ziel (A.), *Phys. Rev.*, 1952, **86**, 755.
[54] Dekker (A. J.), *Physica*, 1955, **21**, 29.
[55] Dekker (A. J.), *Physica*, 1956, **22**, 361.
[56] Balkanski (M.), *J. Physique Rad.*, 1958, **19**, 170.
[57] Lye (R. G.) et Dekker (A. J.), *Phys. Rev.*, 1957, **107**, 977.

REVUE DES LIVRES

Gille (J.-C.), Decaulne (P.) et Pelegrin (M.), **Théorie et calcul des asservissements.** 1 vol., 18,5 × 27 cm, 346 pages, 365 figures et 3 planches hors-texte, 2e édition, Dunod, Paris, 1958, broché 3 400 F, relié 3 900 F.

Le titre de ce livre correspond très exactement à son contenu. Les auteurs reprennent, en la renouvelant la matière qui était traitée dans un ouvrage précédent paru également chez Dunod mais épuisé à l'heure actuelle : *Théorie et technique des asservissements.* Ils en ont extrait la partie correspondant à la théorie et au calcul, en introduisant de nombreuses modifications, pour en faire le présent volume. La partie correspondant aux problèmes plus spécialement techniques, également convenablement remaniée et mise à jour, fait l'objet d'un autre volume à paraître chez Dunod *Les organes des systèmes asservis.*

Un troisième ouvrage *Problèmes d'asservissements avec solutions* (Dunod, 1957) complète la trilogie. La caractéristique de cet ouvrage est la clarté d'exposition qui le rend particulièrement bien adapté à son dessein didactique. Une particularité intéressante est que le niveau mathématique nécessaire pour la compréhension ne dépasse pas le niveau du concours d'entrée aux écoles d'ingénieurs.

L'introduction des connaissances nouvelles se fait très progressivement et le lecteur prend ainsi peu à peu contact avec les difficultés propres aux asservissements. Ce livre se présente comme un ensemble complet. Sa lecture n'exigeant pas de connaissances spéciales, son étude peut être entreprise sans difficultés par tout ingénieur ou chercheur qui aurait affaire à des problèmes d'asservissement. D'autre part pour l'étudiant qui désire maitriser une technique nouvelle, cet ouvrage fournit une excellente initiation à la théorie. L'exposé comprend des notions sur les systèmes non linéaires qui sont traités en généralisant les résultats obtenus pour les systèmes linéaires. Innovation à noter : ce traitement est incorporé dans le cadre général de l'ouvrage et les auteurs ont cherché à supprimer la barrière théorique qui sépare les deux espèces de problèmes. Cette innovation est d'autant plus louable du point de vue du praticien que tous les systèmes pratiques sont non linéaires et que la théorie linéaire ne constitue qu'une première approximation.

En résumé un bon livre, qui remplit bien le dessein que ses auteurs se sont proposés.

M. Pauthier.

Banner (E. H. W.), **Instruments électroniques de mesure** (traduit de l'anglais par M. Bouvier et A. Maitre), 1 vol., relié, 16 × 25 cm, 494 pages, 240 figures. Dunod, Paris, 1959, 5 400 F.

L'électronique permet d'obtenir facilement des rapports d'amplification très grands. D'autre part son absence d'inertie fait qu'elle peut suivre fidèlement les phénomènes les plus rapides. Il est donc naturel que son emploi se généralise dans les méthodes de mesure. Cette tendance est favorisée par le fait que la technique électronique progresse constamment à une allure très rapide. Tous les jours on voit des problèmes de mesure insolubles la veille, entrer dans le domaine des applications courantes. C'est pourquoi il nous semble qu'un livre traitant des instruments de mesure électronique puisse être très précieux à un chercheur ou un technicien qui n'est pas spécialement versé dans cette partie. Il est évident qu'un tel livre ne peut être qu'une collection de recettes classées plus ou moins arbitrairement. En effet un traitement d'ensemble exigerait de passer en revue les phénomènes marquants de la physique électronique et ensuite un cours complet de technique des mesures sans oublier quelques éléments de la théorie de l'information. Il ne peut en être question. Le but de ce livre est d'aider ceux qui butent devant un problème précis en leur proposant un certain nombre de solutions. Une fois qu'on aura trouvé la voie d'investigation la plus prometteuse, on aura intérêt à consulter un ouvrage plus spécialisé. Une bibliographie importante complète d'ailleurs chaque chapitre.

En résumé, ce livre a un caractère essentiellement pratique et doit permettre de dépanner rapidement le chercheur ou le technicien qui n'est pas familier avec l'électronique. Il est utile de donner un extrait de la table des matières pour indiquer dans quels domaines de préférence il peut rendre des services :

Appareils indicateurs. — Tube à cathode chaude et à cathode froide. — Tube à rayons cathodiques. — Dispositifs photoélectriques. — Redresseurs métalliques et à cristal et conducteurs à caractéristiques non linéaires. — Détecteurs de radiations et de particules. — Instruments de mesure utilisant des tubes. — Instruments à tubes cathodiques. — Instruments de mesure photoélectronique. — Instruments redresseurs. — Instruments de mesure des radiations. — Jauges d'épaisseur à radiation. — Compteurs électroniques et apparentés. — Appareils utilisant des capteurs électromécaniques pour la mesure de grandeurs non électriques. — Instruments électriques. — Instruments de mesure de grandeurs physiques.

M. Pauthier.

LETTRES A LA RÉDACTION

STRUCTURE ET POUVOIR RÉFLECTEUR DES COUCHES DE GERMANIUM OBTENUES PAR ÉVAPORATION SOUS VIDE

Par Mme Sonja ROBIN-KANDARE, M. H. DAMANY,
Laboratoire des Hautes Pressions.
et Mme L. TERTIAN,
Laboratoire des Rayons X du C. N. R. S., Bellevue.

Dans une précédente publication [1] nous avons rendu compte des résultats obtenus pour le pouvoir réflecteur de couches de germanium préparées par différentes techniques : évaporation à partir d'un ruban de tantale, d'un creuset de tungstène, et d'un creuset de tungstène enrobé d'oxyde de béryllium ou d'oxyde d'aluminium. Dans tous les cas, il y a une attaque plus ou moins forte du matériau qui sert de support au germanium fondu. Nous nous sommes donc proposés de trouver un moyen d'évaporation plus satisfaisant. La tension de vapeur relativement faible du germanium à son point de fusion ne nous a pas permis d'utiliser le canon à électrons comme nous l'avions fait pour le silicium [2]. Finalement nous avons utilisé pour préparer les couches la méthode de bombardement électronique non focalisé [3] d'un petit creuset de graphite pur contenant du germanium. Le germanium fondu ne mouille pas le graphite et ne forme pas de carbure — tout au moins dans nos conditions de chauffage. La source d'électrons est un filament hélicoïdal formé de 4 spires de tungstène de diamètre 0,5 mm entourant le creuset. Ce dernier est porté à un potentiel positif de quelques 1 600 volts par rapport au filament. Le débit électronique est de 50 à 60 milliampères. Enfin, le traitement thermique des couches est effectué sous vide par les mêmes procédés que pour le silicium [2].

Structure des couches. — L'évaporation de germanium sur un support non chauffé conduit toujours à des couches amorphes, ce que confirme l'examen par diffraction électronique en réflexion. Par contre, si le support est chauffé en cours d'évaporation à plus de 400 °C, les couches sont cristallisées avec orientation fibreuse ; deux orientations possible : axe [110] (aspect laiteux) ou axe [100] perpendiculaire au plan du support. Si le support n'est chauffé qu'à 300 °C, la couche obtenue est amorphe.

En ce qui concerne l'effet d'un traitement thermique sous vide, après l'évaporation, sur des couches évaporées sur des supports non chauffés, donc amorphes, il nous semble utile d'examiner ce que l'on trouve dans la littérature. Certains auteurs comme H. König [4], J. J. Trillat et ses collaborateurs [5] donnent des températures de cristallisation comprises entre 450 et 500 °C. Dans le cas de ces travaux le traitement thermique est effectué dans le diffractographe sur des couches sans support (examen par transmission) relativement minces (moins de 500 Å) et ayant manifestement été exposées à l'air. H. Richter et G. Breitling [6] ont étudié par diffraction des rayons X la structure de couches évaporées épaisses (10^{-3} cm) ; ils ont fait subir à une même couche plusieurs traitements thermiques à des températures croissantes et après chaque traitement, ils ont examiné la structure obtenue. Ils ne trouvent pas de température de cristallisation bien définie, mais constatent que cette température varie d'une couche à une autre dans de larges limites. D'autres auteurs, enfin, ne précisent pas assez les conditions dans lesquelles ils opèrent : c'est le cas de J. M. Dunoyer [7] et de A. H. Gebbie [8].

Les couches que nous avons étudiées avaient des épaisseurs comprises entre 2 000 et 3 000 Å, et pour les couches évaporées sur support non chauffé et soumises ensuite à un traitement thermique sous vide, nous constatons une différence importante selon que la couche a été exposée ou non à l'air. Les couches non exposées à l'air ont cristallisé avec une très légère tendance d'orientation fibreuse (axe [110] perpendiculaire au plan du support) sous l'effet d'un traitement thermique à une température de 520 °C. Par contre, l'examen au diffractographe en réflexion ne révèle aucune trace de cristallisation dans la partie superficielle des couches qui, après l'exposition à l'air, ont subi un traitement thermique à 520 °C, prolongé pendant plus de deux heures. Nous avons même chauffé certaines de ces couches jusqu'à 600 °C pendant plusieurs heures, et l'examen en réflexion indiquait encore une structure amorphe. Mais nous notions alors sur la courbe du pouvoir réflecteur dans l'ultraviolet l'apparition des maxima qui caractérisent l'état cristallisé ; c'est pourquoi nous avons effectué un décapage chimique de la surface de ces couches, suivi d'un second examen en réflexion au diffractographe. On constate alors que l'intérieur de la couche est effectivement cristallisé. Nos expériences confirment donc les hypothèse de H. Richter et O. Furst [9] sur l'influence des gaz adsorbés en ce qui concerne la cristallisation : cristallisation relativement facile des couches qui n'ont pas été exposées à l'air — cristallisation plus difficile et seulement en profondeur pour les couches qui ont été préalablement exposées à l'air.

Nous avons remarqué que les diagrammes obtenus en réflexion pour des couches amorphes présentaient systématiquement un déplacement des halos vers le centre du diagramme par rapport au diagramme obtenu en transmission. Ce phénomène peut s'expliquer de deux façons : soit que les couches amorphes, dont la résistivité est très élevée, se chargent électriquement au cours de l'examen et provoquent une déviation du faisceau électronique; soit que la surface non cristallisée et exposée à l'air présente des distances interatomiques anormales.

Propriétés optiques. — Les conditions expérimentales pour la mesure du pouvoir réflecteur ont déjà été exposées par ailleurs [10]. Le domaine spectral étudié s'étend de 1 000 à 3 000 Å. En ce qui concerne des couches amorphes, préparées dans des conditions très voisines, on peut dire que la reproductibilité des résultats n'est pas parfaite (dispersion des résultats atteignant plus ou moins 5 % en valeur absolue).

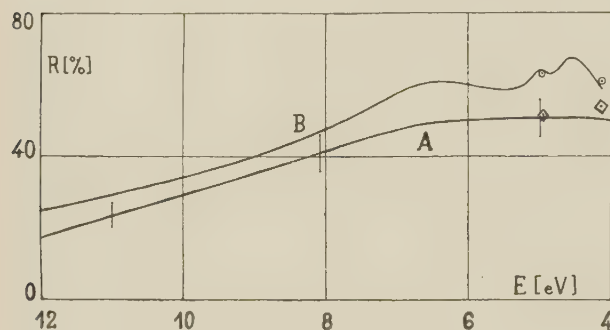


Fig. 1. — Les points représentés sur la figures correspondant aux résultats de A. H. Gebbie.

Nous donnons ci-contre la courbe moyenne A du pouvoir réflecteur du germanium amorphe, les traits verticaux délimitant le domaine de dispersion des résultats pour des couches préparées dans des conditions légèrement différentes. Dans le domaine des plus grandes longueurs d'onde, nos résultats rejoignent ceux de A. H. Gebbie [8]. Le pouvoir réflecteur des couches cristallisées est légèrement supérieur à celui des couches amorphes. Il est représenté par la courbe *B* qui montre vers 4,4 eV un maximum assez prononcé, un faible maximum vers 5 eV et un autre maximum peu prononcé vers 6,3 eV. Les résultats de A. H. Gebbie ne sont pas en désaccord avec les nôtres dans la région où il y a recoupement, mais Gebbie n'a pas assez de points de mesure pour mettre en évidence l'existence des maxima que nous observons. L'existence de ces maxima semble caractéristique de l'état cristallisé ; on constate leur apparition pour des couches dont l'examen par diffraction des électrons révèle un début d'organisation dans la structure. Comme pour le silicium, l'interprétation quantitative de la forme de cette courbe est difficile dans l'état actuel de la théorie des bandes appliquée aux propriétés optiques dans le domaine spectral étudié. L'existence des maxima semble liée néanmoins à des transitions électroniques directes entre la bande de valence et la bande de conduction.

Lettre reçue le 13 février 1959.

BIBLIOGRAPHIE

[1] Kandare (S.), *C. R. Acad. Sc.*, 1957, **245**, 1716.
[2] Robin-Kandare (Sonja), Damany (H.) et Tertian (L.), *J. Physique Rad.* 1959, **20**, 504.
[3] O'Bryan (H. M.), *Rev. Sc. Instr.*, 1934, **5**, 125.
[4] *Reichsber, Phys.*, 1944, **1**, 4.
[5] Trillat (J. J.), Tertian (L.) et Fourdeux (A.), *Le Vide*, 1956, **11**, 190.
[6] *Z. Naturforsch.*, 1958, **13**a, 988.
[7] *J. Physique Rad.*, 1951, **12**, 602.
[8] *Ph. D. Thesis*, Reading, 1952.
[9] *Z. Naturforsch*, 1951, **6**a, 38.
[10] Robin-Salomond (Mme S.), *Thèse*, Paris, 1954. Fabre (D.), *Diplome d'Études Supérieures*, Paris, 1956.

CUVE LONGUE POUR ÉTUDES SPECTROGRAPHIQUES SOUS HAUTES PRESSIONS

Par R. Coulon, J. Robin et B. Vodar,

Laboratoire des Hautes Pressions C. N. R. S.-D. E. F. A., Bellevue (Seine-et-Oise).

Pour l'étude de bandes d'absorption faibles nous avons construit une cuve dont la longueur utile est de 340 cm [1], [2]. Possédant intérieurement un miroir concave à chaque extrémité elle peut être utilisée en triple passage donnant ainsi des longueurs équivalentes d'environ dix mètres. Cette cuve est prévue pour effectuer des mesures à des pressions allant jusqu'à 1 200 atmosphères et à des températures variables de — 195 à + 200 °C. Dans ces conditions l'épaisseur équivalente de la cuve correspondait à des parcours à la pression atmosphérique de l'ordre de plusieurs kilomètres. Une cuve pour gaz comprimés à réflexion multiples a été utilisée par Herzberg [3], d'après une suggestion de White [4] et lui a permis de mettre en évidence en particulier le spectre de quadrupôle de H_2 sous 5 à 10 atm, mais aucune cuve du même genre pour pressions plus élevées ne semble avoir été réalisée jusqu'ici. Toutes les pièces sont en acier demi-dur nickelé ou en acier inoxydable afin de permettre des études avec des gaz ou liquides corrosifs.

La cuve proprement dite (*fig.* 1) est constituée par deux tubes cylindriques concentriques (1) et (2) fermés par des embases relativement compliquées (3) maintenues en place par les écrous (4). Les deux extrémités étant identiques nous les avons représentées coupées dans deux plans différents.

Le tube extérieur (1) est en acier étiré suédois Sandwick. Le rapport des diamètres intérieur et extérieur est de deux. Le tube intérieur, de même nature a seulement pour rôle de permettre le pré-serrage des joints. Ces derniers sont des joints dits en T à aire non supportée. Pour ne pas enlever de solidité au tube extérieur nous n'avons pas pratiqué d'épaulement important à l'intérieur de celui-ci ni percé d'orifice dans sa paroi latérale. Les entrées de gaz (5) se font par raccordements coniques des tuyaux hautes pressions sur les embases. Les fenêtres (6) sont ici des disques de quartz ou de corindon de diamètre extérieur 25 mm et d'épaisseur 15 mm. Le passage de la lumière se fait par un trou central de 12 mm dans les embases. Lorsqu'on veut employer la cuve en simple passage on peut en réduire le volume en effectuant un remplissage avec des tubes en acier inoxydable, le tube central, très lisse servant de guide de lumière. Le triple passage s'obtient par fixation d'un miroir concave en pyrex aluminé ou platiné (7) devant chaque fenêtre, à l'intérieur de la cuve. Le miroir est fixé sur une bague support par vis pointeaux. Cette bague est à son tour fixée au porte fenêtre par trois vis avec ressort

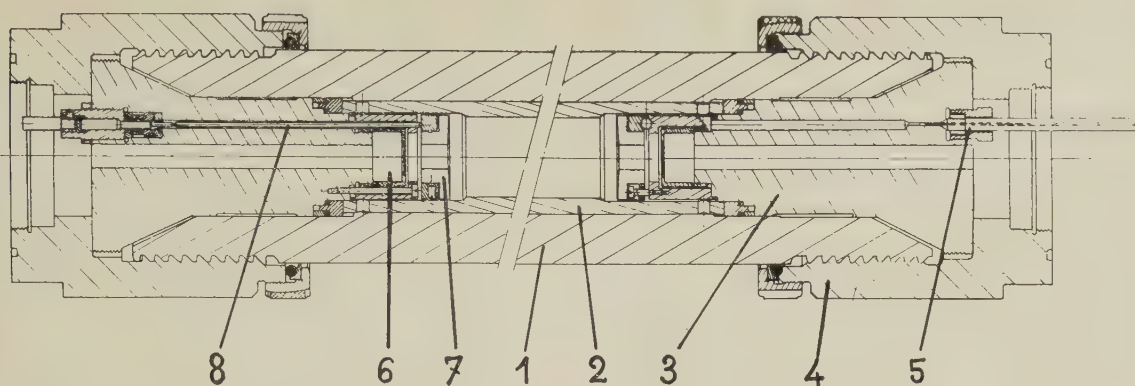


FIG. 1.

de rappel et peut pivoter d'un certain angle autour d'un point fixe matérialisé par une bille d'acier. On effectue le réglage des miroirs une fois la cuve montée et mise en place en vissant plus ou moins, de l'extérieur, les deux tiges poussoirs (8) situées à 120° de la bille par rapport à l'axe central. L'étanchéité du passage de ces tiges-poussoirs est assurée également par joints en T.

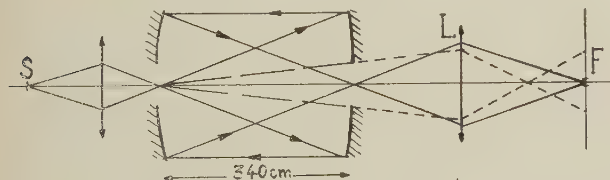


FIG. 2.

Le trajet des rayons lumineux est schématisé (*fig.* 2). En pointillé nous avons ajouté le trajet de la portion du faisceau lumineux n'ayant effectué qu'un seul passage. La lumière est focalisée sur la fenêtre d'entrée. Le faisceau ayant effectué un triple passage est focalisé à nouveau par les miroirs concaves sur la fenêtre de sortie puis sur la fente F du spectrographe par une lentille L. Le faisceau central, n'ayant effectué qu'un seul passage, n'est pas focalisé sur la fenêtre de sortie ; il est un faisceau de lumière quasi parallèle (compte tenu de la grande longueur de la cuve et de la non ponctualité de la source). Si L se trouve à $2f$ de la fenêtre de sortie de la cuve et de F ce dernier faisceau sera focalisé par L à environ mi-distance entre L et F et donnera dans le plan de F une tache lumineuse déjà très dispersée. Si à cela on ajoute que la surface réfléchissante des miroirs qui envoie des rayons focalisés en F après trois traversées est 12 fois supérieure à celle de leur trou central par lequel passe le faisceau direct on comprendra aisément qu'un faible pourcentage de la lumière entrant par la fente du spectrographe n'a traversé qu'une fois la cuve. Ce pourcentage doit être calculé pour chaque série d'expériences car il varie légèrement avec la netteté et la ponctualité de l'image de la source sur la fenêtre d'entrée ainsi qu'avec diverses conditions expérimentales. Évidemment, un système à passages multiples [comme par exemple (3)] avec élimination complète de la lumière directement transmise, aurait été préférable, mais avec les dimensions adoptées cela s'avérait très délicat, et la solution de compromis qui a été retenue constitue au moins une bonne solution d'attente et a permis déjà d'effectuer des expériences utiles.

Sous une aussi grande longueur absorbante, il est nécessaire d'avoir une bonne homogénéité de température et de composition des mélanges gazeux. Cela oblige à attendre, après chaque modification du contenu gazeux de la cuve, un certain temps parfois fort long avant de faire des études spectrales. Ce temps serait réduit par la suppression du tube intérieur qui gêne les échanges thermiques avec le tube extérieur et la mise en place, dans la cuve, d'un système d'agitation du milieu gazeux ; cette modification est envisagée. Pour le refroidissement et le chauffage de cette cuve, il a été construit un bac thermostaté (dont une extrémité est représentée) (*fig.* 3). Des résistances

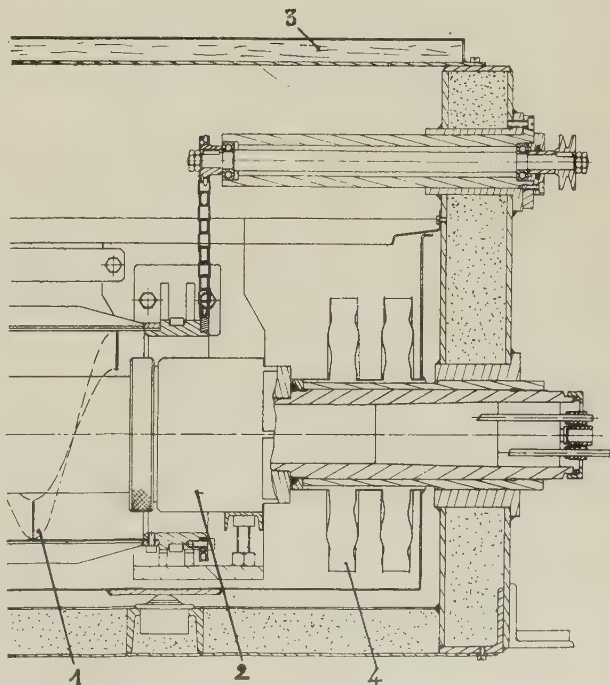


FIG. 3.

chauffantes plongent dans le bain liquide. L'agitation de ce bain homogénéisant la température se fait par un tube cylindrique à ailettes spiralées intérieures (1) qui tourne autour de la cuve. Les ailettes obligent le liquide à circuler d'un bout à l'autre du bac, dans un sens le long de la cuve (2), à l'intérieur du tube tournant et dans le sens opposé entre le tube tournant et la paroi du bac, c'est-à-dire autour des résistances chauffantes. Un couvercle à double paroi (3), avec circulation d'eau assure une condensation de la majeure partie des vapeurs du milieu liquide. Les différences de dilatations de la paroi intérieure du bac par rapport à sa paroi extérieure et par rapport à la cuve de mesure, qui peuvent être de plusieurs centimètres lorsqu'on passe de — 195 à + 200 °C, sont compensées par des joints coulissants et des membranes métalliques (4).

Cette cuve a été surtout utilisée jusqu'à maintenant pour étudier l'influence de la pression sur des bandes faibles du spectre de l'oxygène [1] et l'apparition de bandes de transitions simultanées dans certains mélanges gazeux (N_2-H_2 par exemple) [2], [5], résultats qui seront publiés séparément.

Lettre reçue le 21 février 1959.

BIBLIOGRAPHIE

[1] ROBIN (J.), *Thèse*, Paris, 1958.
[2] COULON (R.), *Thèse*, Paris, 1958.
[3] HERZBERG (G.), The Atmos. of the Earth and Planets, 1949, p. 346.
[4] WHITE (J. U.), *J. Opt. Soc. Amer.*, 1942, **32**, 285.
[5] VODAR (B.), Conf. Roy. Soc., Londres, décembre 1958.

EFFETS DE LA PRESSION SUR LA BANDE D'ABSORPTION DU COMPLEXE BENZÈNE-IODE ET SUR LE SPECTRE D'ABSORPTION DU BENZÈNE A L'ÉTAT COMPLEXÉ.

Par B. OKSENGORN,
Laboratoire des Hautes Pressions à Bellevue.

On sait que le benzène et l'iode forment un complexe qui possède une bande d'absorption intense dans l'ultraviolet proche [1]. Mulliken [2] a montré que l'on pouvait attribuer cette bande à la transition entre un état non lié (A, B) et un état presque complètement ionisé (A^- — B^+). Il a appelé ce genre de solutions, complexes moléculaires à transfert de charge.

Ham [3] a étudié des solutions diluées de benzène et d'iode dans différents solvants, à la pression atmosphérique, et dans le n-heptane sous une pression de 2 000 kg/cm². Il a observé deux sortes d'effet avec la pression : *a*) une augmentation d'intensité de la bande du complexe ; *b*) un déplacement important vers le rouge de cette bande.

Il nous a paru intéressant d'étudier les effets de la pression sur le complexe benzène-iode dans d'autres conditions expérimentales. En effet, notre appareillage [4] nous permet d'utiliser des cuves d'absorption de très faibles épaisseurs, de l'ordre du micron, nécessaires pour obtenir des densités optiques convenables avec les substances aromatiques pures. Nous avons donc travaillé sur des solutions d'iode dans le benzène liquide pur. Avec une concentration d'iode de 0,54 mole/litre dans le benzène pur, nous observions la bande d'absorption du complexe vers 2 950 Å et les bandes du benzène vers 2 600 Å, et nous avons étudié l'effet de la pression sur ces deux spectres d'absorption, à la température constante de 50 °C.

La bande du complexe est déplacée vers le rouge d'une manière importante, quand la pression croît, et l'intensité de la bande augmente, comme dans les expériences de Ham. La figure 1 donne les déplacements mesurés en fonction de la pression. L'erreur de pointé sur le maximum de la bande qui est très large est importante (10 % en valeur relative). La courbe présente une légère concavité tournée vers le bas.

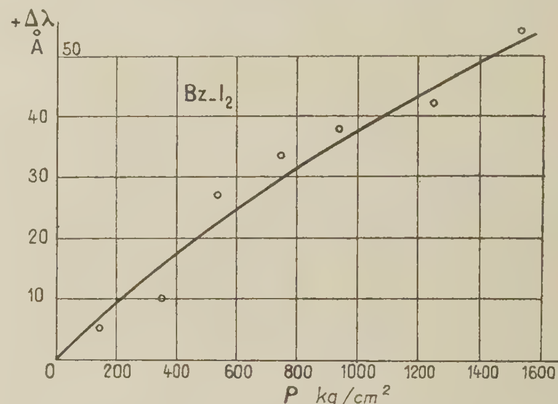


FIG. 1. — Déplacement de la bande d'absorption du complexe Bz-I_2 en fonction de la pression.

Ham [3] a utilisé la théorie de Bayliss [5] pour expliquer les déplacements qu'il observe. Ses points expérimentaux s'alignent bien sur une droite en fonction de $(n^2 - 1)/2n^2 + 1$ (n = indice de réfraction du solvant). Par extrapolation à zéro, Ham a trouvé que la longueur d'onde de la bande du complexe à l'état de vapeur, devrait être déplacée vers les grandes fréquences de 4 000 cm⁻¹. Sur la figure 2 on a porté les déplacements en cm⁻¹, en fonction de la constante diélectrique du benzène ; on voit que les points expérimentaux s'alignent sur une droite. Par extrapolation

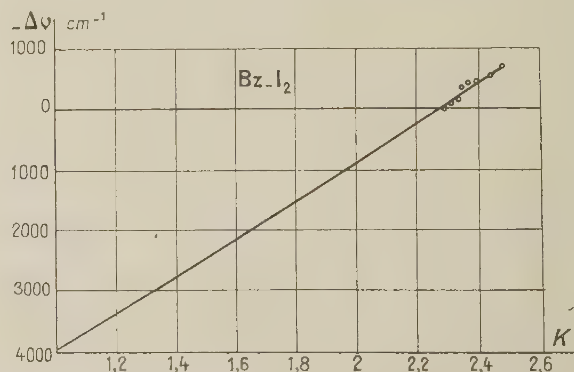


FIG. 2. — Déplacement de la bande d'absorption Bz-I_2 en fonction de la constante diélectrique du benzène.

à la valeur $K = 1$, on trouve 4 000 cm^{-1} environ, pour le déplacement de la bande d'absorption entre les états liquide et vapeur, en conformité avec le résultat obtenu par Ham.

Quand la pression augmente, les bandes d'absorption du benzène à 2 600 Å, dans l'état complexé sont déplacées vers le rouge ; on observe des déplacements un peu plus grands que dans le benzène pur. La figure 3

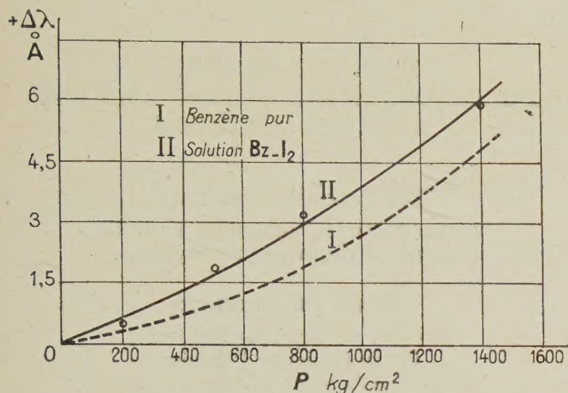


Fig. 3. — Déplacement des bandes U.V. du benzéne.

montre les courbes expérimentales dans les deux cas. A la pression de 1 500 kg/cm² la différence est de l'ordre de 1 Å. Il faut noter que le phénomène est dans le sens inverse pour les dérivés monosubstitués du benzène [4].

On observe aussi un élargissement des bandes avec l'accroissement de pression, alors que pour le benzène pur l'élargissement est pratiquement inexistant, à la même température. Les microphotogrammes de la figure 4 montrent bien cette différence.

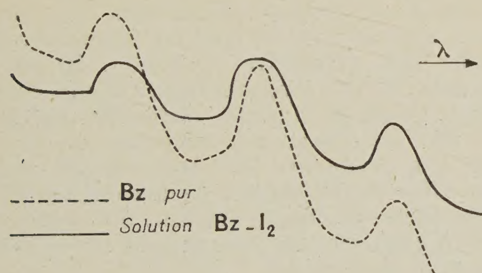


Fig. 4. — Bandes d'absorption du Bz liquide à 1400 kg/cm² de pression.

Cet élargissement est probablement lié à l'existence d'un moment dipolaire permanent ; en effet, on l'observe aussi pour les dérivés monosubstitués et disubstitués du benzène, et Fairbrother [6] a montré que le complexe benzène-iode possédait un moment dipolaire de 0,6 D.

Si l'on admet la validité de la théorie de Shuler [7] sur les complexes moléculaires à électrons π, au moins pour les liquides purs, la présence de l'iode doit avoir pour effet principal d'abaisser la hauteur V_c de la barrière de potentiel, et d'augmenter en conséquence l'énergie de délocalisation des électrons π. Il en résulte un accroissement des déplacements pour les bandes d'absorption, conformément à nos résultats.

Lettre reçue le 5 mars 1959.

BIBLIOGRAPHIE

[1] Benesi (H. A.) et Hildebrand (J. H.), *J. Amer. Chem. Soc.*, 1948, **70**, 2382 ; 1949, **71**, 2703.
[2] Mulliken (R. S.), *J. Amer. Chem. Soc.*, 1952, **74**, 811.
[3] Ham (J.), *J. Amer. Chem. Soc.*, 1954, **76**, 3881.
[4] Oksengorn (B.), *Thèse*, J. de Recherches du C. N. R. S., n° 45, décembre 1958.
[5] Bayliss (N. S.), *J. Chem. Phys.*, 1950, **18**, 292.
[6] Fairbrother (F.), *Nature*, 1947, **160**, 87 ; *J. Chem. Soc.*, 1948, 1051.
[7] Shuler (K. E.), *J. Chem. Phys.*, 1952, **20**, 1865 ; 1953, **21**, 765.

CALCUL DU CHAMP QUADRUPOLAIRE DE LA MOLÉCULE ClH

Par L. Galatry et F. Schuller,
Laboratoire des Hautes Pressions, Bellevue (Seine-et-Oise

A l'occasion d'une étude récente sur l'influence des actions de dispersion sur le déplacement des bandes infrarouges de l'acide chlorhydrique [1], on a été

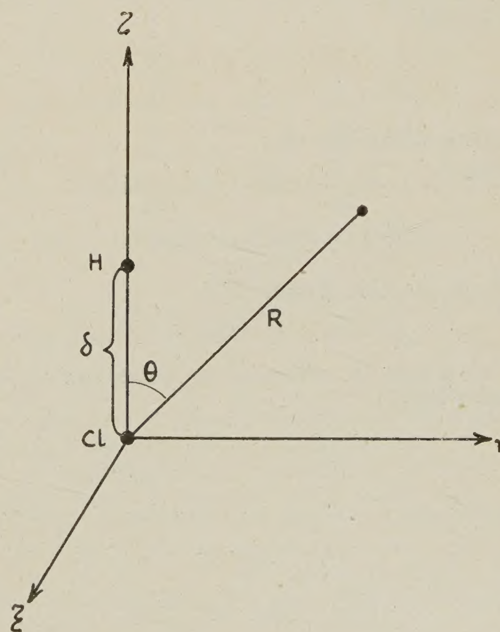


Fig. 1.

conduit à évaluer les intégrales moléculaires intervenant dans l'expression du champ quadrupolaire de la molécule de ClH. Si l'on désigne par φ l'opérateur

potentiel quadrupolaire, on a [2] dans les coordonnées de la figure 1 :

$$\varphi = \frac{1}{R^3}\left[\frac{1}{2}(3\sin^2\theta - 1)\left(\sum_i e\,\xi_i^2\right) + \frac{1}{2}(3\cos^2\theta - 1)\left(\sum_i e\,\zeta_i^2 - e\,\delta^2\right) - \frac{1}{2}\left(\sum_i e\,\eta_i^2\right)\right.$$

Les sommations portent sur tous les électrons de la molécule. On représentera la molécule par un produit $\Psi_c . \Psi_v$, Ψ_c étant la fonction d'onde du cœur $(1s)^2$ $(2s)^2$ $(2p)^6$ $(3s)^2$ $(3p)^4$ supposé non perturbé par H^+, et Ψ_v la fonction d'onde des deux électrons de liaison. La valeur moyenne Φ de φ ne dépend plus, sous ces hypothèses, que des éléments de matrice $< \;>$ des carrés des coordonnées des deux électrons de valence, pris avec les fonctions Ψ_v :

$$\Phi(R, \theta) = \frac{ea_0^2}{R^3}\left[< \xi^2 > (3\sin^2\theta - 1) + \left(< \zeta^2 > - \frac{\delta^2}{2}\right)(3\cos^2\theta - 1)\right]$$

(a_0 est le rayon de Bohr, ξ, ζ et δ sont exprimés en unités atomiques).

$$E_{\text{tang}} = 3\frac{1}{R^4}Q\sin\theta\cos\theta$$

$$E_{\text{rad}} = -\frac{3}{2}\frac{1}{R^4}Q(1 - 3\cos^2\theta)$$

avec

$$Q = 2ea_0^2\,(< \xi^2 > - < \zeta^2 > + \delta^2/2).$$

En posant

$$< \xi^2 > = \alpha' + \beta' x,$$

$$< \zeta^2 > = \alpha'' + \beta'' x \quad \text{et} \quad \delta = \delta_0 + x,$$

la position d'équilibre δ_0 :

$$Q_0 = 2ea_0^2(\alpha' - \alpha'' + \delta_0^2/2)$$

$$\left(\frac{\partial Q}{\partial x}\right)_0 = 2ea_0(\beta' - \beta'' + \delta_0).$$

Avec la fonction d'onde [1] :

$$\Psi_v = p(1)\,h(2) + p(2)\,h(1) + 1{,}02 . p(1)\,p(2)$$

où p et h sont les orbitales de Slater $3p\sigma$ et $1s$, on obtient alors [1]

$$\alpha' = 0{,}7750 \qquad \beta' = 0{,}0304$$
$$\alpha'' = 3{,}4595 \qquad \beta'' = 1{,}2996.$$

En prenant $\delta_0 = 2{,}42$ 2], on obtient :

$$Q_0 = 0{,}65\ \ 10^{-26}\ \text{cgs}$$

$$\left(\frac{\partial Q}{\partial x}\right)_0 = 5{,}8\ \ 10^{-18}\ \text{cgs}.$$

Ces résultats sont donnés à titre indicatif car il y aurait lieu, en effet, dans un calcul plus précis, de tenir compte dans Ψ_v de l'hybridation des orbitales des électrons de valence.

Lettre reçue le 24 mars 1959.

BIBLIOGRAPHIE

[1] SCHULLER (F.) et GALATRY (L.), *C. R. Acad. Sc.*, 1959, **248**, 1974.
SCHULLER (F.), GALATRY (L.), et VODAR (B.), *C. R. Acad. Sc.*, 1959, **248**, L194.

[2] BÖTTCHER (C. J. F.), Theory of electric polarization, Amsterdam, 1952.

ESSAI DE MESURE DU RAYONNEMENT GLOBAL AMBIANT A HAUTE ALTITUDE

Par Jacques LABEYRIE,
Centre d'Études Nucléaires de Saclay
Service d'Électronique Physique,

Henri LE BOITEUX,
Service de Physique Générale,
Office National d'Études
et de Recherches Aéronautiques.

Un ensemble de détection comprenant trois compteurs de Geiger et l'électronique de mesure a été monté dans la tête d'un missile expérimental construit par l'O. N. E. R. A. et servant aux recherches de cet office. Cet ensemble était destiné à étudier le comportement du détecteur et des éléments d'électronique aux accélérations correspondant à un lancement par fusée et dans une atmosphère raréfiée, et par ailleurs, à déterminer le rayonnement direct ambiant en fonction de l'altitude. En effet ce rayonnement ambiant constitue un bruit de fond qui peut être gênant lors de mesures prévues pour une date ultérieure sur les aérosols radioactifs.

Les détecteurs utilisés étaient trois compteurs de Geiger du type 3G5 (LCT) dont les principales caractéristiques sont : diamètre extérieur : 10 mm, longueur totale : 80 mm, longueur utile : 38 mm, épaisseur de paroi : acier 30 mg/cm², verre 300 mg/cm². Le volume utile de chacun des compteurs est de 3 cm³ environ. Ces compteurs 3G5 sont remplis avec un mélange Néon-Argon-Brome. Ils avaient auparavant subi avec succès en fonctionnement des accélérations jusqu'à 20 g dans le sens longitudinal et 5 g (400 p/s) dans le sens transversal.

Les compteurs, avec leur axe grossièrement parallèle à l'axe du missile, étaient fixés à 70 cm de l'extrémité avant, appliqués contre le côté intérieur de la paroi, dont l'épaisseur à cet endroit est de 300 mg/cm² d'aluminium. Le serrage était fait par une feuille de laiton de 500 mg/cm². Au delà de cette feuille se trouvait une épaisseur importante (15 g/cm² en moyenne) de cuivre et d'isolant sous forme d'équipement électronique (*fig.* 1). L'axe du missile est resté sensiblement vertical pendant les 60 km considérés ci-dessous.

Les trois compteurs, montés en parallèle, indiquaient au sol, un bruit de fond de 0,5 ± 0,05 impulsion par seconde en l'absence de tout blindage et de 0,2 ± 0,01 impulsion par seconde lorsqu'ils étaient entourés de 5 cm de plomb. La section transversale utile totale des trois compteurs était de 1,45 cm².

Une fois placé dans le missile, l'ensemble des trois compteurs donnait un taux de comptage de 0,3 ± 0,05 impulsion par seconde.

Les impulsions mises en forme rectangulaire (hauteur : 20 volts, largeur 3 ms) étaient transmises au sol par l'intermédiaire d'une des voies de la Télémesure utilisée par l'O. N. E. R. A. sur ses missiles expérimentaux.

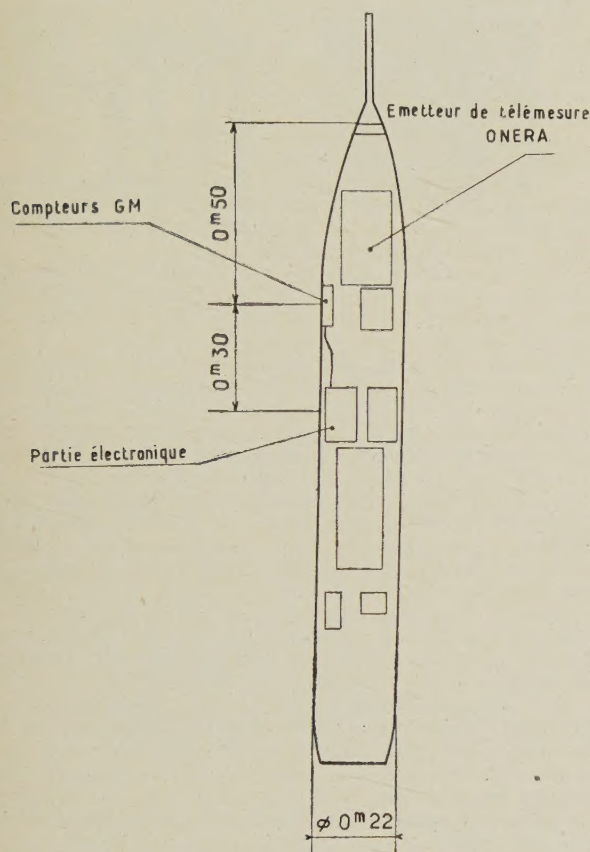


Fig. 1. — Schéma de la tête du Missile « DANIEL ».

Le lancement a eu lieu le 27 janvier 1959 à 17 heures GMT par 43° de latitude N environ. Les impulsions des compteurs ont été reçues au sol par les appareils récepteurs et enregistreurs de l'O. N. E. R. A. jusqu'à l'altitude 65 km.

Résultats. — Sur la figure 2 on a indiqué la relation entre le taux de comptage enregistré et l'altitude.

Les taux de comptage ont été exprimés en impulsions par seconde. Les valeurs ont été obtenues en découpant le temps en intervalles de 3 secondes.

La courbe obtenue a la même forme générale que les diverses courbes publiées par Gangnes, Jenkins et Van Allen [1] et qui avaient été obtenues avec un compteur de grand volume (50 cm^3) ayant une section utile transversale de 4,5 cm^2, monté sur les fusées V2 puis sur les fusées Aerobee. Dans ces expériences l'axe du compteur était également vertical et la latitude était 41°N. Les taux de comptage obtenus par ces auteurs à l'endroit du maximum dans leurs divers essais : 48, 44 et 51 imp./s (avec une valeur moyenne de 48) sont plus forts (avec un facteur 3,1 environ) que le taux de comptage que nous avons obtenu à l'endroit du maximum (15,6 imp./s.). Il est à remarquer que les sections transversales des compteurs utilisés sont dans le même rapport 3,1 et que les sections longitudinales sont dans le rapport 3,6 environ. Il semble donc que la présence de la masse avoisinant les compteurs, qui était plus grande dans notre essai que dans ceux de Gangnes et al., n'a pas modifié sensiblement le taux de comptage par unité de surface

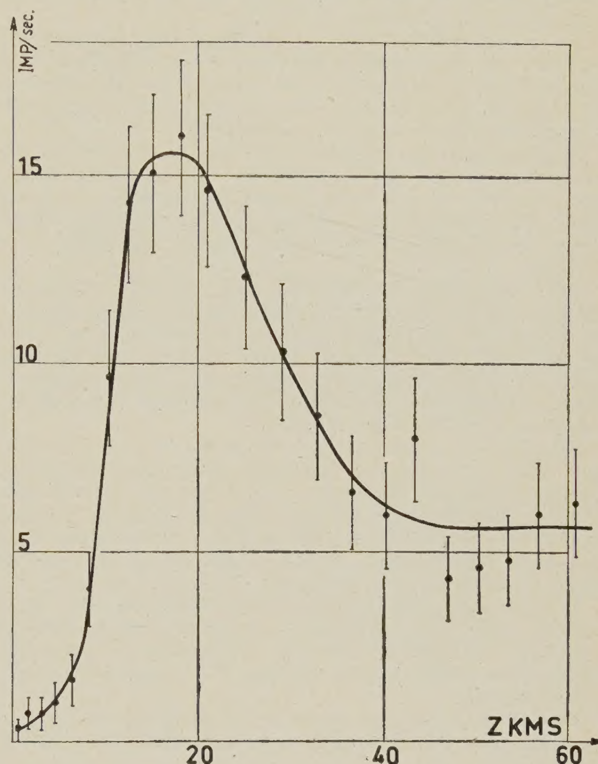


Fig. 2. — Missile expérimental « DANIEL »
λ 43°N
27-1-1958.
Taux de comptage de 3 compteurs GM
en fonction de l'altitude.

sensible. Par ailleurs, le taux de comptage, dans notre essai, décroît un peu plus lorsque l'altitude augmente, que dans les essais de Gangnes et al.

Un palier s'établit à partir de 45 kilomètres, la valeur du taux de comptage sur ce palier étant de 5,7 impulsions par seconde. Les taux de comptage obtenus par Gangnes et al. sur la palier avaient une valeur moyenne de 22 ; si l'on rapporte cette valeur à celle du maximum 48 déjà cité, on trouve un rapport de : 2,2, alors que le rapport entre les taux de comptage du maximum et du palier dans notre essai est : 15,6/5,7, soit 2,7. La faible durée de nos mesures et les fluctuations importantes ne permettent cependant pas de conclure sur cette différence.

Lettre reçue le 24 mars 1959.

(1) *Phys. Rev.*, 1949, 75, 57.

REVUE DES LIVRES

KITTEL (C.), **Introduction à la physique de l'état solide** (traduit par E. L. Huguenin et R. Papoular), 1 vol. relié, 16 × 25 cm, 612 pages, 220 figures. Dunod, Paris, 1958, 6 800 F.

Le livre du professeur Kittel est trop connu pour qu'il soit nécessaire de le présenter longuement. Le peu de science exigée au départ, l'étendue des domaines explorés, le monceau de connaissances apportées en font l'outil de choix de toute personne, novice ou non, qui veut connaître et comprendre les propriétés physiques des corps solides.

La première édition (1953) était déjà une excellente introduction à la physique du solide.

La seconde édition (1956) s'accroît de 200 pages ; une centaine est consacrée à développer les chapitres déjà traités, l'autre centaine représente des chapitres nouveaux sur alliages, semi-conducteurs, photoconductivité, luminescence et imperfection dans les solides.

Espérons qu'une troisième édition viendra traiter de questions dont on regrette l'absence : Influence des symétries des cristaux sur leurs propriétés physiques, Pouvoir thermoélectrique, Effets Peltier et Seebeck, Émission d'électrons secondaires, Frottement interne, Propriété des surfaces...

MM. Huguenin et Papoular ont traduit la seconde édition. C'est là un travail difficile, non pas que le langage de Kittel soit hermétique, car une traduction mot à mot est souvent suffisante, mais parce que son style est très concis, le déplacement d'une virgule, une omission, ou une légère insuffisance de traduction suffisent à modifier totalement le sens d'une phrase.

En parcourant la traduction française, il nous a semblé que MM. Huguenin et Papoular n'ont pas échappé à quelques-uns des nombreux pièges qui les attendaient.

Ainsi, dans le texte français, page 11, ligne 3, il fallait transcrire directement le mot anglais « arrangement » au lieu de le traduire par « réseau », page 17 on dit : axe de symétrie inverse pour « rotation inversion axis ».

D'autre part, dans le chapitre sur les dislocations il nous semble qu'il faut traduire « twinning » par maclage « whisker » par poil (et non pas fil ou pointe), « step » par, marche (ou gradin) et non échelon, « low angle boundary » par sous-joint.

De temps en temps nous avons constaté qu'un mot ou même une phrase complète ont été oubliés dans la traduction.

Afin d'étudier plus sérieusement l'importance de ces défauts, nous avons porté une attention particulière au chapitre XVII : Lacune, diffusion et centres colorés dans les réseaux. Nous transcrivons directement ce que nous relevons dans l'édition française :

— page 478, ligne 4 : rayer « autour de la seconde lacune » ; la traduction y gagnera en rigueur et la phrase en clarté ;

— page 478, ligne 5 : rajouter « peut être » avant « quelque 10 % » ;

— page 478, avant-dernière ligne : il fallait traduire « passe par-dessus la barrière » (et non « traverse ») ;

— page 481 : il fallait dire « lacune d'ion positif » et non « lacune ionique positive » (car une telle lacune se comporte comme une charge négative). La même faute se retrouve p. 493 ;

— page 481, avant-dernière ligne : la traduction de « non-equilibrium concentration » par « distribution déséquilibrée » ne nous semble pas heureuse ;

— page 482, ligne 4 : la cause de l'amincissement de la raie de résonance qui est donnée dans l'expression « motional narrowing » n'est pas transcrite en français. Une grande quantité d'informations est perdue, d'autant plus que, ligne 5, il fallait écrire « rapide » et non pas « grande » ;

— page 483, ligne 17 : Kittel précise que dans le processus d'échange deux atomes échangent leur place « simultaneously » ;

— page 484, ligne 3 : le lecteur français non prévenu ne comprend pas facilement que les « repères » (markers) sont constitués par les fils de molybdène eux-mêmes ;

— page 485, première ligne : il s'agit de vapeur d'alcalin (métal), et non de vapeur alcaline ;

— page 485, dernière ligne : vapeur dans laquelle il a baigné... (et non dans laquelle il baigne...) ;

— page 487, ligne 9 : « sans donner au centre F une nature atomique » est une mauvaise traduction de « unless the atomic nature of the environment of an F center is taken explicitly into the model ».

Nous ne relevons donc que peu d'erreurs notables. Encore doit-on tenir compte du fait que ce chapitre présentait aux traducteurs plus de difficultés que la plupart des dix-huit autres.

Une autre critique, qui s'applique à toutes les traductions scientifiques, porte sur la bibliographie. Il est bien de signaler que le livre de Seitz est traduit en français et que la traduction du Spenke va paraître, mais ces notes sont trop rares puisque l'on dispose au moins de la traduction des livres de Zener, Pauling et de Becker. Il est anormal que le lecteur soit renvoyé aux livres *Die Quantenstatistik* et *Wave propagation in periodic structure* de Brillouin sans signaler la traduction française du premier et le livre plus récent de Brillouin et Parodi sur la propagation des vibrations dans les milieux périodiques. Il faut féliciter l'éditeur de recommander le livre de Guinier *Théorie et technique de la radiocristallographie*, mais pourquoi ne signale-t-il pas les livres de Barriol, Friedel, Dekeyser et Amelinckx, Mathieu, Aigrain et Englert... ?

La même remarque s'applique aux articles cités en référence. Il est normal que Kittel recommande de lire un article de Smart pour comprendre la théorie de Néel et se réfère, de préférence, aux travaux en anglais des rares auteurs français cités. Mais il aurait été utile de compléter les références originales de Kittel par une compilation des travaux équivalents en français.

La présentation est différente dans les deux éditions : les références de l'édition anglaise sont en bas de page, celles de l'édition française en fin de chapitre. Il en résulte des numérotations différentes des renvois bibliographiques. En haut de page, l'édition française porte le titre du livre et celui du chapitre, l'édition originale celui du chapitre et du paragraphe, ce qui nous semble plus instructif. Selon la mauvaise tradition des livres scientifiques français, l'index des auteurs est absent, tandis qu'il s'étend sur 9 pages dans l'édition américaine. Quant à l'index des matières, il est réduit au quart de l'original ! La présentation est bonne, la lecture aisée.

Les courbes, schémas et photographies sont parfaitement reproduits. Les fautes d'impression sont rares — moins, cependant, que dans l'édition américaine — et généralement sans importance.

Le livre de Kittel méritait d'être traduit. La traduction française de MM. Huguenin et Papoular rendra de très grands services aux étudiants et ingénieurs qui ont quelques difficultés avec la langue anglaise.

Y. LE CORRE.

Le Gérant : MAURICE BLONDIN. — Dépôt légal : 2e trim. 1959. — Imp. TAFFIN-LEFORT, à Lille (France).